



TITLE:

Fe/貴金属多層膜におけるFe層間磁  
氣的相互作用( Dissertation\_全文 )

AUTHOR(S):

山崎, 展樹

---

CITATION:

山崎, 展樹. Fe/貴金属多層膜におけるFe層間磁氣的相互作用. 京都大学,  
1994, 博士(理学)

ISSUE DATE:

1994-03-23

URL:

<https://doi.org/10.11501/3075810>

RIGHT:

②

学位申請論文

F e / 貴金属多層膜における

F e 層間磁氣的相互作用

山 崎 展 樹

There are more things in heaven and earth,  
Horatio, / Than are dreamt of in your  
philosophy. [ Hamlet, I. v. 166 ]



□□□ 目 次 □□□

I 序論	・ ・ ・	1
II 貴金属層を介した F e 層間磁氣的相互作用の直接的検証	・ ・ ・	5
§ 1 実験のねらい	・ ・ ・	6
§ 2 試料の作製及び評価	・ ・ ・	8
§ 3 実験及び実験結果		
3. 1 磁気共鳴実験に関する序説	・ ・ ・	2 4
3. 2 実験	・ ・ ・	2 7
3. 3 実験結果	・ ・ ・	3 2
§ 4 解析		
4. 1 モデル設定及び解析に用いる式の導出	・ ・ ・	4 2
4. 2 解析結果	・ ・ ・	5 4
§ 5 議論	・ ・ ・	7 2
§ 6 まとめ ( 1 )	・ ・ ・	8 4

III F e 層間が弱い相互作用によって磁氣的に結合した F e / A u 多層膜の物性	・ ・ ・	8 5
§ 1 実験のねらい	・ ・ ・	8 6
§ 2 試料の作製及び評価	・ ・ ・	8 9
§ 3 実験 A ( 層間相互作用による次元クロスオーバー )		
3. 1 実験	・ ・ ・	9 8
3. 2 実験結果	・ ・ ・	1 0 0
3. 3 モデル設定及びスピン波近似による計算	・ ・ ・	1 0 7
3. 4 議論	・ ・ ・	1 1 8
§ 4 実験 B ( 層間相互作用による磁気転移温度の変化 )		
4. 1 実験	・ ・ ・	1 2 0
4. 2 実験結果	・ ・ ・	1 2 2
4. 3 議論	・ ・ ・	1 2 9
§ 5 まとめ ( 2 )	・ ・ ・	1 3 1
IV 結論	・ ・ ・	1 3 2
謝辞	・ ・ ・	1 3 4
参考文献	・ ・ ・	1 3 5



[ 挿入図一覧 ]

図 1	蒸着装置主要部	...	9
図 2 (a)	Fe / Cu / Fe 三層膜試料の構造概念図	...	13
(b)	Fe / Ag / Fe 三層膜試料の構造概念図	...	14
(c)	Fe / Au / Fe 三層膜試料の構造概念図	...	15
図 3	Fe / Cu / Fe 三層膜試料の X 線回折パターン	...	17
図 4	Fe / Cu / Fe 三層膜試料の透過電子顕微鏡による断面観察	...	18
図 5 (a)	Au / Fe (10Å) / Au 試料の磁化曲線	...	19
(b)	Au / Fe (30Å) / Au 試料の磁化曲線	...	20
図 6	Fe (10Å) 層と Fe (30Å) 層のメスバウアースペクトル	...	23
図 7	E S R 装置における試料固定の概念図	...	28
図 8	試料と外部静磁場 H, 高周波磁場 h 及び座標軸との方向関係	...	29
図 9	Fe / Au / Fe 三層膜試料における面内磁気異方性	...	31
図 10 (a)	Fe / Cu / Fe 三層膜試料の典型的な強磁性共鳴スペクトル	...	33
(b)	Fe / Ag / Fe 三層膜試料の典型的な強磁性共鳴スペクトル	...	34
(c)	Fe / Au / Fe 三層膜試料の典型的な強磁性共鳴スペクトル	...	35

図 11 (a)	Fe / Cu / Fe 三層膜試料における Cu 層の厚さと共鳴磁場・シグナル強度比の相関	...	36
(b)	Fe / Ag / Fe 三層膜試料における Ag 層の厚さと共鳴磁場・シグナル強度比の相関	...	37
(c)	Fe / Au / Fe 三層膜試料における Au 層の厚さと共鳴磁場・シグナル強度比の相関	...	38
図 12	2 スピンモデルによる交流帯磁率から計算した微分吸収スペクトル	...	55
図 13	2 スピンモデルによって得られた結合パラメーター J と共鳴磁場の関係及び実験値に基づく J の評価 (Fe / Au / Fe 系)	...	58
図 14	2 スピンモデルによって得られた結合パラメーター J' と共鳴磁場の関係及び実験値に基づく J' の評価 (Fe / Cu / Fe 系)	...	60
図 15	2 スピンモデルによって得られた結合パラメーター J' と共鳴磁場の関係及び実験値に基づく J' の評価 (Fe / Ag / Fe 系)	...	61
図 16	Fe / Cu / Fe 系における Fe 層間結合パラメーター J' の Cu 層厚への依存性	...	65
図 17	Fe / Ag / Fe 系における Fe 層間結合パラメーター J' の Ag 層厚への依存性	...	66
図 18	Fe / Au / Fe 系における Fe 層間結合パラメーター J の Au 層厚への依存性	...	67
図 19	Fe 層間の貴金属層の違いによる結合パラメーター J' の貴金属層厚 d への依存性の違い	...	70
図 20	磁化として S Q U I D による実測値を用い 2 スピンモデルによって得られた結合パラメーター J' と共鳴磁場の関係	...	75



図 2 1	磁化測定用 F e / A u 多層膜の構造概念図	・ ・ ・ 9 1
図 2 2	帯磁率測定用 F e / A u 多層膜の構造概念図	・ ・ ・ 9 3
図 2 3	磁化測定用 F e / A u 多層膜の X 線回折パターン	・ ・ ・ 9 5
図 2 4	帯磁率測定用 F e / A u 多層膜の X 線回折パターン	・ ・ ・ 9 6
図 2 5	多層膜 [ F e (10Å) / A u (50Å) ] 4 の磁化カーブ	・ ・ ・ 9 9
図 2 6	磁化減少の割合 $1 - [M(T) / M(10K)]$ と温度 T との相関	・ ・ ・ 1 0 1
図 2 7	係数 C の積層回数 n への依存性	・ ・ ・ 1 0 3
図 2 8	指数 $\alpha$ の積層回数 n への依存性	・ ・ ・ 1 0 4
図 2 9	$N \times N \times N_z$ の大きさの磁性薄膜を n 枚含むモデル多層膜	・ ・ ・ 1 0 9
図 3 0	励起エネルギー $\varepsilon_z'$ のスピン運動の概念図	・ ・ ・ 1 1 1
図 3 1	式(46)に基づく $n = 1, 12$ に対する計算結果と式(49)への最小二乗フィッティングの結果	・ ・ ・ 1 1 6
図 3 2	理論的に求められた $\alpha$ の n と $J'$ への依存性	・ ・ ・ 1 1 7
図 3 3	外部静磁場の違いによる磁化の温度変化の違い	・ ・ ・ 1 2 3
図 3 4	線形帯磁率 $\chi$ と自発磁化の温度依存性の例 ( $d = 60 \text{ \AA}$ )	・ ・ ・ 1 2 4
図 3 5	線形帯磁率 $\chi$ の温度依存性 (代表例)	・ ・ ・ 1 2 6
図 3 6	転移温度 $T_c$ と線形帯磁率 $\chi$ の極大値 $\chi_{\max}$ の A u 層厚 d への依存性	・ ・ ・ 1 2 7

[ 表 一 覧 ]

表 1	蒸着時の平均的なコンディション (三層膜)	・ ・ ・ 1 1
表 2	S Q U I D で測定した 1 k O e の磁場を膜面内にかけたときの磁化の値	・ ・ ・ 2 2
表 3	レファレンス用 F e 単層膜試料の強磁性共鳴	・ ・ ・ 4 0
表 4	図 1 3 - 1 5 の理論曲線の計算に用いたパラメーター	・ ・ ・ 6 3
表 5	F e 層の磁化及び総磁化比の S Q U I D による実測値及び解析に用いた値の対比	・ ・ ・ 7 4
表 6	F e 層間の強磁性的結合が強い場合の実測及び計算による共鳴磁場	・ ・ ・ 7 9
表 7	蒸着時の平均的なコンディション (多層膜)	・ ・ ・ 9 0



# I

## 序 論

物理学や化学の基礎的研究から新素材開発を目指した工学の応用研究に至るまで、金属多層膜は近年特に多くの研究者の注目を集めている。超高真空技術の発達によって、「研究者の意のままに」原子レベルで構造を制御した良質の多層膜が比較的容易に得られるようになり、さまざまな元素の組み合わせられた系において実験が行われ、莫大な量のデータが蓄積されつつある。特にここ数年の傾向としては、構造が確実に把握された単結晶に近い試料が作製されるようになり、薄膜・多層膜研究において新しい時代が始まりつつあるように感じられる。

良質の多層膜が比較的容易に入手できるようになったことから、以前には明確な答えの得られなかった「古典的な」問題にも新しい光が投げかけられつつある。非磁性層を介した磁性層間の相互作用の問題 [ 1 ] , 特に層間の乱れやピンホール等による直接的な相互作用（接触）ではなく、例えば伝導電子を介した間接的な相互作用が存在するか、そしてその機構はどのようなものかという問題もその一つである。

非磁性層を介した磁性層間相互作用に関して調べた限りで一番古い実験は、1902年に C. Maurain [ 2 ] が  $\text{Fe} / \text{Cu} / \text{Fe}$  三層膜試料を用いて行ったものである。彼は  $\text{Cu}$  層が薄いほど二つの  $\text{Fe}$  層の磁化が同じ方向を向く傾向が強いことを見いだしている。当時の真空技術から考えると、この実験が間接的な相互作用を見ていたとは幾分考え難いが、量子力学出現以前の時代に今日の我々と同じアイデアで実験を行った研究者がいたという事実は注目に値する。その後も真空技術の発展にともない徐々に質の向上した多層膜を用いて多くの同様な実験が行われているが、層間相互作用の問題に多くの研究者が参入するようになったのは、1986年に P. Grünberg ら [ 3 ] が  $\text{Fe} / \text{Cr} / \text{Fe}$  三層膜のブリ



ユアン散乱実験においてCr層が適当な厚さをとるところでFe層の磁化が反強磁性的に結合することを見いだして以来のことであろう。さらに磁性層のスピン配列が反強磁性的になっているとき、巨大な磁気抵抗効果が現れることが発見され[4]、磁性層間の磁氣的結合の問題に研究者の興味が集中することになった。最近では「巨大磁気抵抗効果＝反強磁性的相互作用」と考える者もあり、物理学会でも多少の混乱・誤解が見受けられるが、層間の相互作用の問題は本来巨大磁気抵抗効果とは独立した問題である。すぐに応用に結び付く派手さはないが、層間相互作用そのものの研究は、物理学の基礎的概念を豊富にする可能性のある広大で深淵な研究分野であると思う。

非磁性層を介した磁性層間相互作用の研究という広い領域のうち、この論文では主に二つのテーマを取り上げる。一つは磁性層間相互作用の強さ及び符号（強磁性的または反強磁性的）の非磁性層の厚さへの依存性、そしてもう一つは、磁性層間が非磁性層を介して弱く結合している多層膜の物性である。初めのテーマに関しては、層間相互作用がみられる最小単位である磁性／非磁性／磁性の組み合わせによる三層膜によって、測定手段として電子スピン共鳴（ESR）装置を用いて二つの磁性層が磁氣的に結合した強磁性共鳴モードを観測する。磁性層間相互作用、特に交換相互作用を直接的かつ定量的に評価するには、現在のところブリュアン散乱かこの強磁性共鳴しか手段がない。どちらも強力な研究手段であるが、不思議なことに国内では層間相互作用の研究にこれらを利用しているグループは殆どない。詳細は本論中で述べるが、非磁性層の厚さを増大すれば磁性層間相互作用の強さは弱くなる傾向にあることは当然のこととして考えられる。従って第一のテーマにもとづく実験結果から非磁性層厚と磁性層間相互作用の強さの相関がわ

かれば、非磁性層厚を変えることによって磁性層間相互作用の強さの制御が可能となる。第二のテーマではこのことを利用して、面内には強く、面間には弱い相互作用をもつ擬二次元磁性体を作製し、その物性を調べる。ここでは特に面間相互作用の変化による、二次元磁性から三次元磁性への次元クロスオーバーを温度－磁化相関から評価する。また面間相互作用と磁気転移温度との関係も帯磁率測定によって見積る。

作製する試料に関しては、磁性層にはFeを非磁性層には貴金属（Cu, Ag, Au）を採用した。第一のテーマでは、Fe/Cu/Fe, Fe/Ag/Fe, Fe/Au/Feの三系統の三層膜試料を作製し、各試料に於て貴金属層厚へのFe層間相互作用の依存性を調べると同時に、三つの元素による違いから層間相互作用の機構にも迫りたいと考える。第二のテーマでは、Fe/Au多層膜をAu層厚を変えて作製し、Fe層の磁化及び帯磁率の温度変化を測定する。

非磁性層を介した磁性層間相互作用の研究は世界的にもいまだ進行中であり、特に相互作用の機構に関しては理論的にもこれと言った定説はまだない。その第一の理由は、試料の作製方法や測定手段によって非磁性層厚の関数としての磁性層間相互作用の挙動がまちまちであることによると思われる。つまり理論の依り所となるべき実験事実が確定していないのである。人工物質から「物理」を引き出すことの難しさがここに如実に現れている。実験結果を考察するにあたり、「いったい何が効いているのだろうか？」とこの五年間私自身何度も何度も自問した記憶がある。この研究が僅かでも磁性層間相互作用の本質に迫っているかどうかは今のところ判断をくだすのは難しいであろうが、その困難な問題に対するアプローチの記録としてこの論文を提示する。



## II

### 貴金属層を介した Fe 層間

#### 磁氣的相互作用の直接的検証

## § 1 実験のねらい

この実験においては、 $\text{Fe}/\text{Cu}/\text{Fe}$ 、 $\text{Fe}/\text{Ag}/\text{Fe}$ 、 $\text{Fe}/\text{Au}/\text{Fe}$ の三つの系の三層膜試料を作製し、介在する非磁性層 ( $\text{Cu}$ 、 $\text{Ag}$ 、 $\text{Au}$ ) の厚さの関数としての磁性層 ( $\text{Fe}$ ) 間相互作用の挙動を調べる。

各試料に含まれる二つの  $\text{Fe}$  層は、 $30\text{ \AA}$  と  $10\text{ \AA}$  の違った厚さのものにした。強磁性共鳴では、磁性層がおよそ  $50\text{ \AA}$  以下の薄い場合には、厚さによって共鳴磁場が変化する。これは磁性層の厚さが薄い場合には界面異方性 [5] の影響が顕著になり、磁気異方性がバルクのものからずれてくるためと説明されている。今の場合、二層間に相互作用がないときは、 $\text{Fe}(30\text{ \AA})$  層と  $\text{Fe}(10\text{ \AA})$  層は違う磁場の位置に各  $\text{Fe}$  層固有の共鳴シグナルが現れる。そして層間に相互作用があれば、互いに相手の磁気モーメントを感じて二つのシグナルの位置はこの各  $\text{Fe}$  層固有の磁場からシフトするはずである。

$\text{Fe}$  層の厚さとして  $30\text{ \AA}$  と  $10\text{ \AA}$  を選んだのは、二つのシグナルができる限り離れた位置に現れ、かつシグナル強度にあまり差がないようにする為である。厚さの違いを大きくするほど共鳴磁場位置は離れてくるが、薄い方のシグナル強度が厚い方のシグナル強度に比べて弱すぎると厚い方からくるシグナルの裾の中に薄い方のシグナルが埋もれてしまい共鳴磁場の読み取りが困難になる。 $\text{Fe}$  単層膜の予備的実験から  $30\text{ \AA}$  と  $10\text{ \AA}$  が最もよく上の条件を満足することがわかったのでこの値を採用した。

三層膜ではなく多層膜にしたほうがシグナルの強度がかせげるのでよいように思われる。しかし予備的な実験において、貴金属層の厚さを十分に大きくして層間相互作用が



0に近いと思われる場合にも、多層膜では分離した二つのシグナルが観測されなかった。

この原因は、多層化すると通常の強磁性共鳴モード以外のモードが出現するためではないかと考えられるが、今後の研究が必要とされるところである。なおFe/Au多層膜のブリュアン散乱実験でも、解析の困難な多数のシグナルが観測されており[6]、多層膜では複雑なモードが出現する可能性があることを示唆している。

Fe層が30 Åと10 Åと薄いので、比較的周波数の低いXバンドで強磁性共鳴モードを見る場合には、各Fe層内での磁気モーメントは同位相(波数=0)で才差運動していると考えられる。従って各Fe層に一つの巨視的な磁気モーメントを対応させることができ、二つの磁気モーメント間に相互作用が働いている場合の共鳴モードを計算すればよいことになる。

この研究では実験の便宜上、非晶質基板上に作製した試料を用いた。結晶学的見地から言えば単結晶基板上にエピタキシャル成長させて試料作製することが望ましい。最近世界中でエピタキシャル薄膜を用いた多くの研究が行われているが、結晶の配向度と表面の平滑性や膜の均一性は別の問題である。また、非晶質基板を用いることには、面内の磁氣的異方性を無視できるなどのメリットがある。試料が多結晶化した繊維構造をとり膜面内の異方性が平均化されるので、磁気異方性としては軸が膜面に垂直な一軸異方性のみ仮定すればよい。これは、解析においてモデル設定を行うとき、モデルを単純化できるという観点から考えれば長所である。

## § 2 試料の作製及び評価

この研究において測定の対象となる試料は、超高真空蒸着装置(日電アネルバ社製JPS-100S)を用いて作製された。装置の主要部を図1に示す。作製にあたっては以下の手順が一つのサイクルになり一連の試料が作られる。

(1) 小型ドリル、サンドペーパーや酸を利用して、蒸着源を入れるるつぼ、シャッター、膜厚計や基板ホルダー等に以前の蒸着で付着した物質を落とす。

(2) 蒸着源として貴金属とFeの小片を各々るつぼに入れる。Auの場合はそのままるつぼに入れたが、AgとCuの場合は熱伝導を悪くするためにTa皿をひいてその上に置いた。るつぼとの熱伝導が良すぎると、蒸着時に電子銃のパワーをかなり上げないと原子が蒸発しないからである。

(3) 基板としてガラス(最大4枚まで可)とポリイミドを固定する。図1のように各部を組み上げ、接合部に銅製のガスケットを持つ上下2箇所の開閉部を閉める。

(4) ターボ分子ポンプ[TMP]によって $10^{-5}$  Torr台まで引く。

(5) アセトン装置の各接合部にかけてリークがないかチェックした後、装置全体を加熱し200℃に2昼夜くらい保つ。これは内壁に付着した気体分子を追い出すためである。尚、この間圧縮空気を流すことによって基板部は冷却されている。ポリイミドは熱に弱く、200℃程度までしかもたないからである。この操作によって $10^{-6}$  Torr台にいたる。

(6) 装置の加熱をやめ、ポンプをTMPからクライオポンプ[CP]に切り替え、一晩



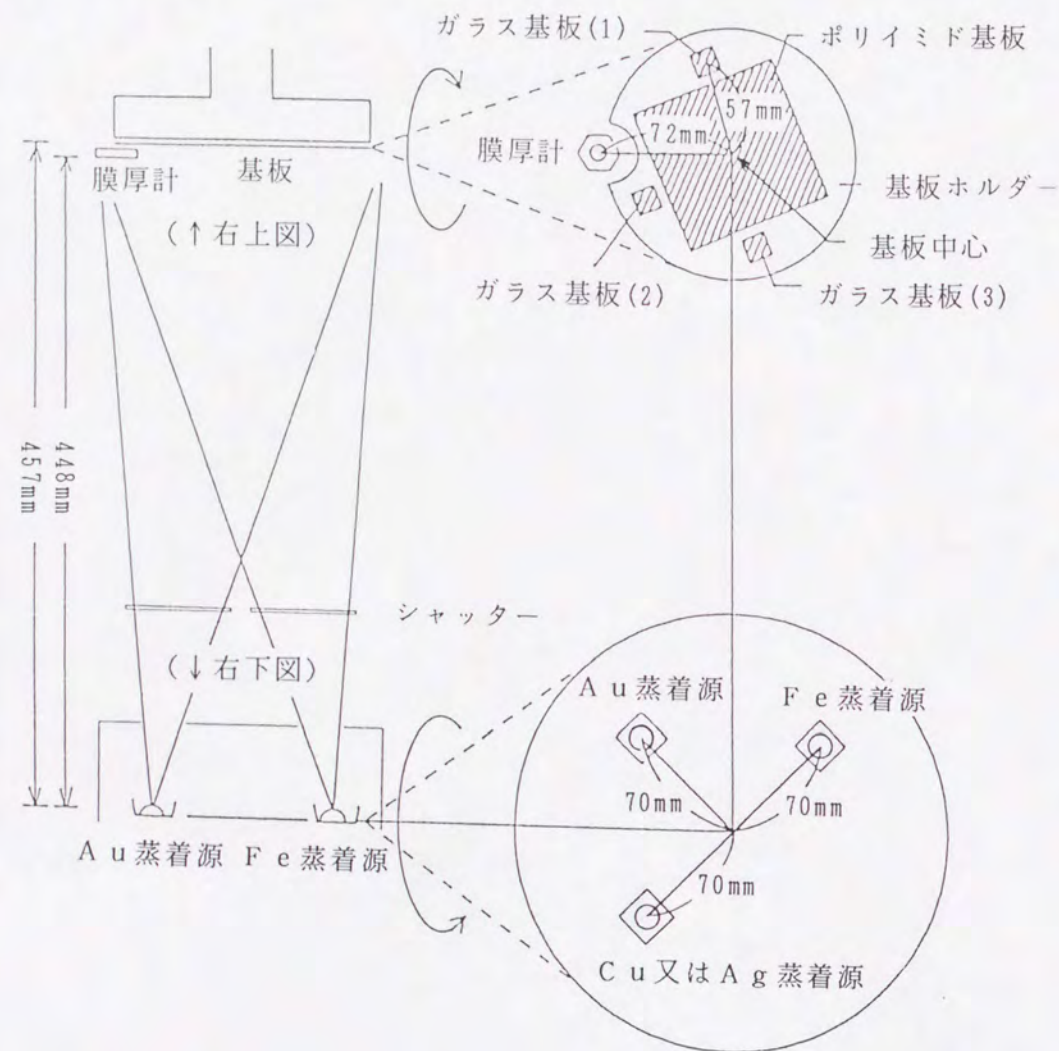


図 1 蒸着装置主要部

引き続ける。真空は $10^{-8}$  Torr前半から $10^{-9}$  Torr台になる。

(7) 再び各接合部からリークがないか確認した後、装置に電子銃用電源や窒素トラップ用の液体窒素ボンベ、アース線等をつなぐ。

(8) るつば直上のシャッターは閉じたままで、各蒸着源を電子銃で加熱して蒸着源に含まれている気体分子を追い出す。窒素トラップを液体窒素で満たす。

(9) 蒸着開始。シャッターを開いて蒸着源を電子銃で加熱すると、蒸発した原子のビームが基板に到達し薄膜が形成される。水晶発振を利用した膜厚計によって蒸着量はモニターされ、あらかじめプログラムした膜厚になるとコンピューター (IC6000) の指令によりシャッターが閉じられる。シャッターの開閉は自動に行われるが、電子銃電源の電流・電圧は手動で調整する必要がある。この操作を繰り返して望みの試料を作製する。また必要ならば蒸着中に基板を冷却または加熱することができる。蒸着時の平均的なコンディションを表 1 に示す。

上述の 1 サイクルには約 5 日間を費やすが、同じ系の試料を続けて作製するために基板交換のみで下の蒸着源周辺の掃除をしない場合は、基板交換をすばやく行えば、装置全体の加熱 (ベーキング) は 1 昼夜でも蒸着時の真空には余り影響はないようである。この場合は、1 サイクルを約 3 ~ 4 日で終わらせる。また基板直下のシャッターを利用して分割すれば、一つの基板上に複数の貴金属層厚をもった試料が作製できる。一番上を Au の酸化防止層で覆った場合でも、貴金属層厚に  $20 \text{ \AA}$  の違いがあれば、試料を光に透かして見ればその濃淡から区別が出来るので、蒸着機のマシンタイムがあまり取れないと



	基板温度	蒸着速度 [Å/秒]	蒸着中の 真空計示度 [T o r r]	電子銃電源	
				電流 [mA]	電圧 [kV]
Fe	室温	0.2	$\sim 1 \times 10^{-8}$	50	40
Au		0.3 バッファ層 及び 酸化防止層 0.2 Fe層間層	$\sim 2 \times 10^{-8}$	350	35
Ag		0.2	$\sim 1 \times 10^{-8}$	15	40
Cu		0.2	$\sim 1 \times 10^{-8}$	20	40

表 1 蒸着時の平均的なコンディション  
(三層膜)

きは、一つの基板上に5つの貴金属層厚をもつ試料を作製したこともある。これ以上分割数を増やすのは、シャッターの端の効果の膜厚に及ぼす影響をおそれて行っていない。

作製した試料の構造概念図を図2(a),(b),(c)に示す。Fe層間の貴金属層をCu, Ag, Auにした全ての試料において、ポリイミド直上のバッファ層及び最上層の酸化防止層はAuにしたが、これは三つの元素に関して出来る限り同一の条件になるように試料を作製するためである。中間層がCu及びAgの場合には、Fe(10Å)層を下にFe(30Å)層を上にした。これはFe(10Å)層をCu又はAgの上に蒸着する場合、Cu層やAg層の影響によってFe(10Å)層がfcc構造になることをおそれての処置である。

層間相互作用がない場合のレファレンス試料として、Cu, Ag, Auすべての系に対して、Fe(10Å)層のみ又はFe(30Å)層のみのFe単層膜試料を作製した。この場合の構造は、Fe(10Å)層(Fe(30Å)層)のみの場合には、図2の概念図中のFe(30Å)層(Fe(10Å)層)だけが無い試料に相当する。貴金属層はすべて50Åの厚さとした。下のFe層が無い場合とある場合とでは、それより上の構造に違いがでそうである。しかし後の実験結果で述べるように、通常の三層膜試料で貴金属層を100Å程度の厚さにしてFe層間の相互作用が殆ど無い場合の共鳴磁場と、このレファレンス試料としての単層膜試料の共鳴磁場が一致しているので、磁性という点ではこの違いの心配はまず無いといってよい。

作製した試料の構造評価は、主にX線回折によって、一部を透過電子顕微鏡によって行った。Cu, Ag, Au三つの系において、作製した三層膜試料はAuバッファ層



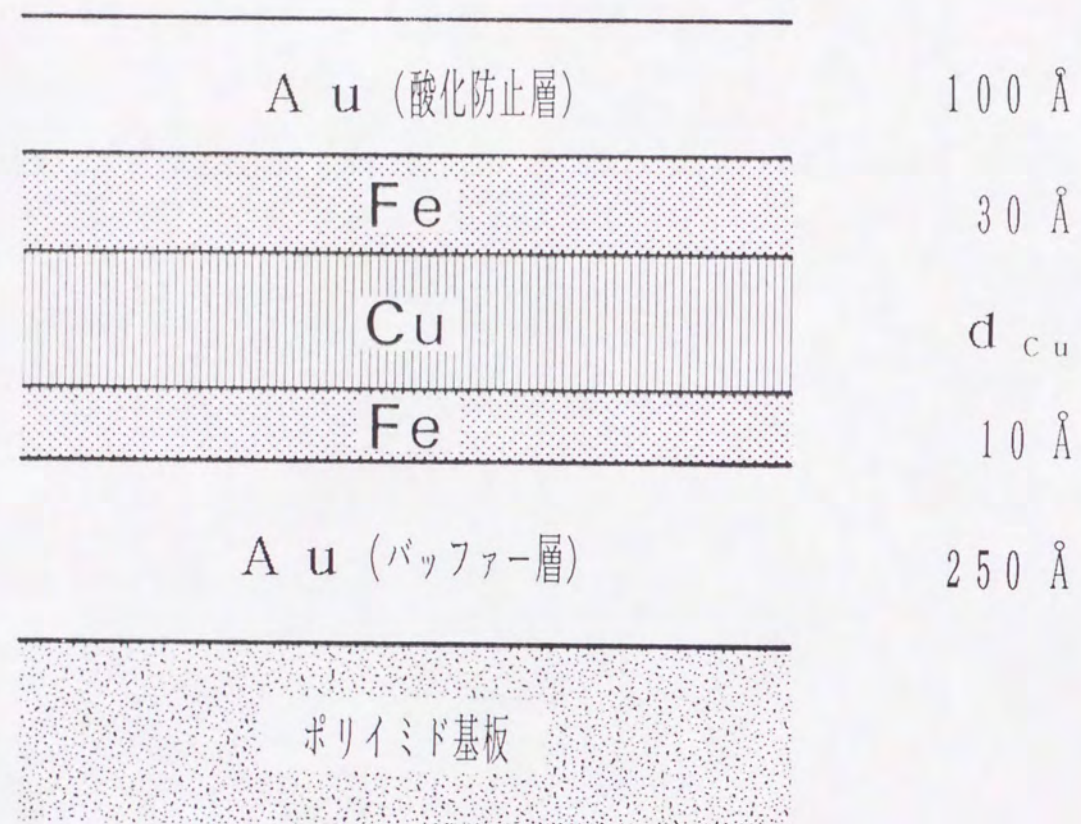


図 2 (a) F e / C u / F e 三層膜試料の構造概念図

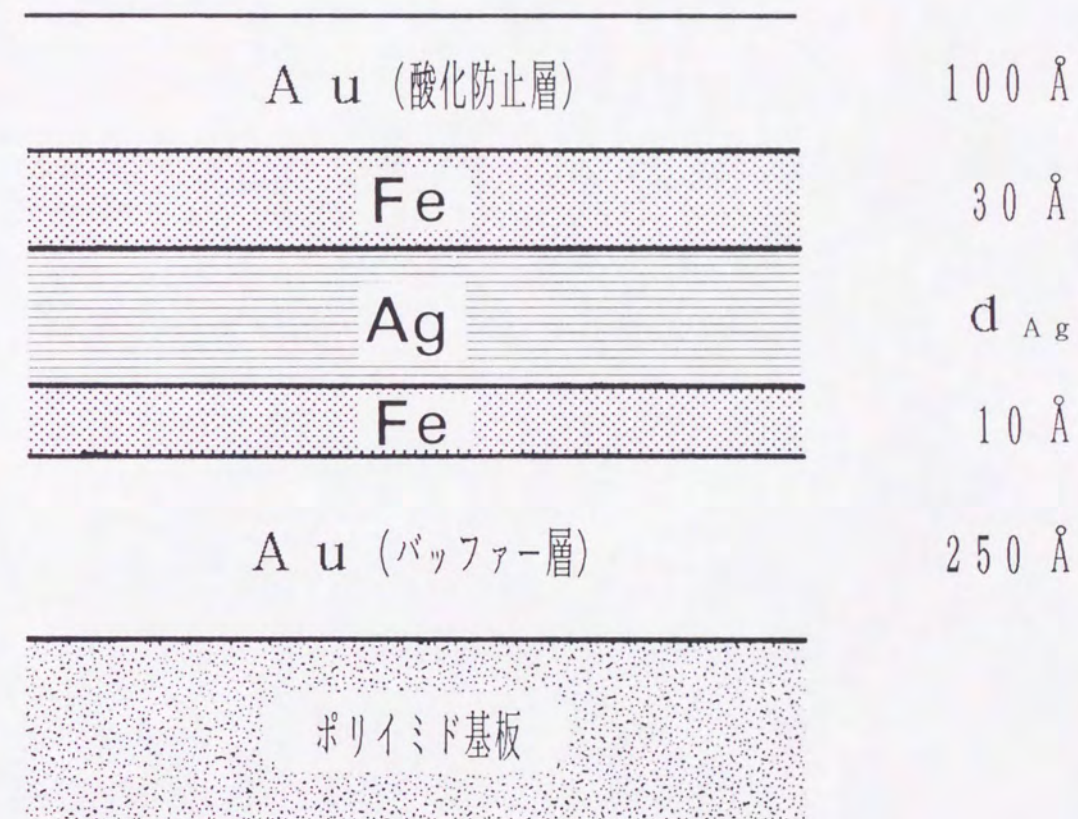


図 2 (b) F e / A g / F e 三層膜試料の構造概念図



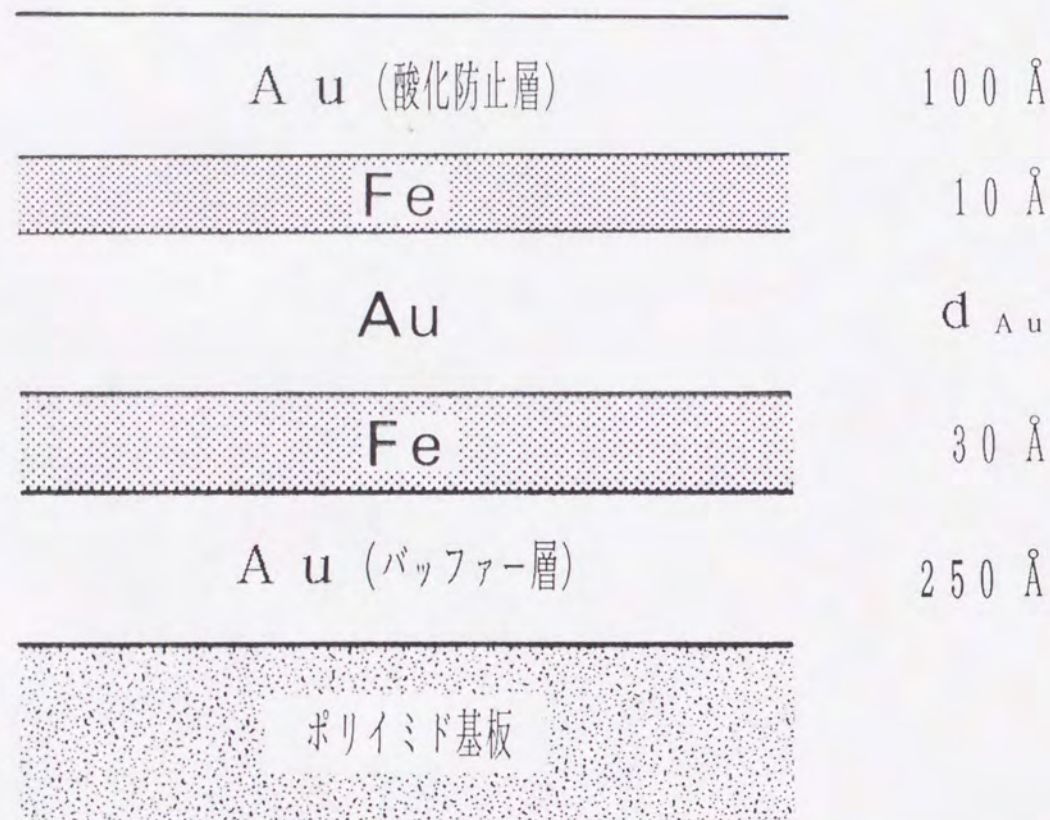


図 2 (c) Fe/Au/Fe 三層膜試料の構造概念図

と Au 酸化防止層を含めて総膜厚が 400~500 Å 程度と薄いので、その構造解析は困難を極める。特に作製に使用した蒸着装置には、作製中の膜の成長の様子をその場観察できる装置が何もついていないので、構造評価は作製後に大気圧下に出した試料について行うことになる。

図 3 に Fe/Cu/Fe 三層膜試料の中角領域での X 線回折パターンを示す。Cu 層の厚さ  $d_{Cu} = 62 \text{ Å}$  の試料であるが、Fe や Cu からのピークは見られず、バッファ層と酸化防止層の Au からと思われるピークだけが見られる。Au は主に膜面に平行に (111) 配向しているのがわかる。Fe/Au/Fe 三層膜及び Fe/Ag/Fe 三層膜の場合でも、同様に Au のピークのみが観測されている。

図 4 に、図 3 と同じ試料に対する透過電子顕微鏡写真を示す。Fe と Cu の電子数密度に差があまり無いために、Fe 層と Cu 層のコントラストがなく、バッファ層と酸化防止層の間に白く抜けているのが Fe/Cu/Fe 三層膜である。断面はポリイミド基板に蒸着した試料をマイクロームで切断してつくるので、切る前の元の層構造はこの写真で見られるよりはきれいだったはずである。しかしこの写真でも Au バッファ層の上端及び Au 酸化防止層の下端は、比較的きれいで平坦なことがわかる。層構造に乱れがあっても、Fe 層間の貴金属層の厚さを変えていくとき、その乱れ方が同じであれば層間相互作用を調べるのには影響は殆ど無いものと思われる。

次にレファレンス用に作製した Fe 単層膜の磁化測定について述べる。Cu, Ag, Au の三つの系において Fe (10 Å) 層及び Fe (30 Å) 層の磁化容易方向は膜面内であった。代表例として図 5 (a) に Au/Fe (10 Å)/Au 試料, (b) に Au/Fe



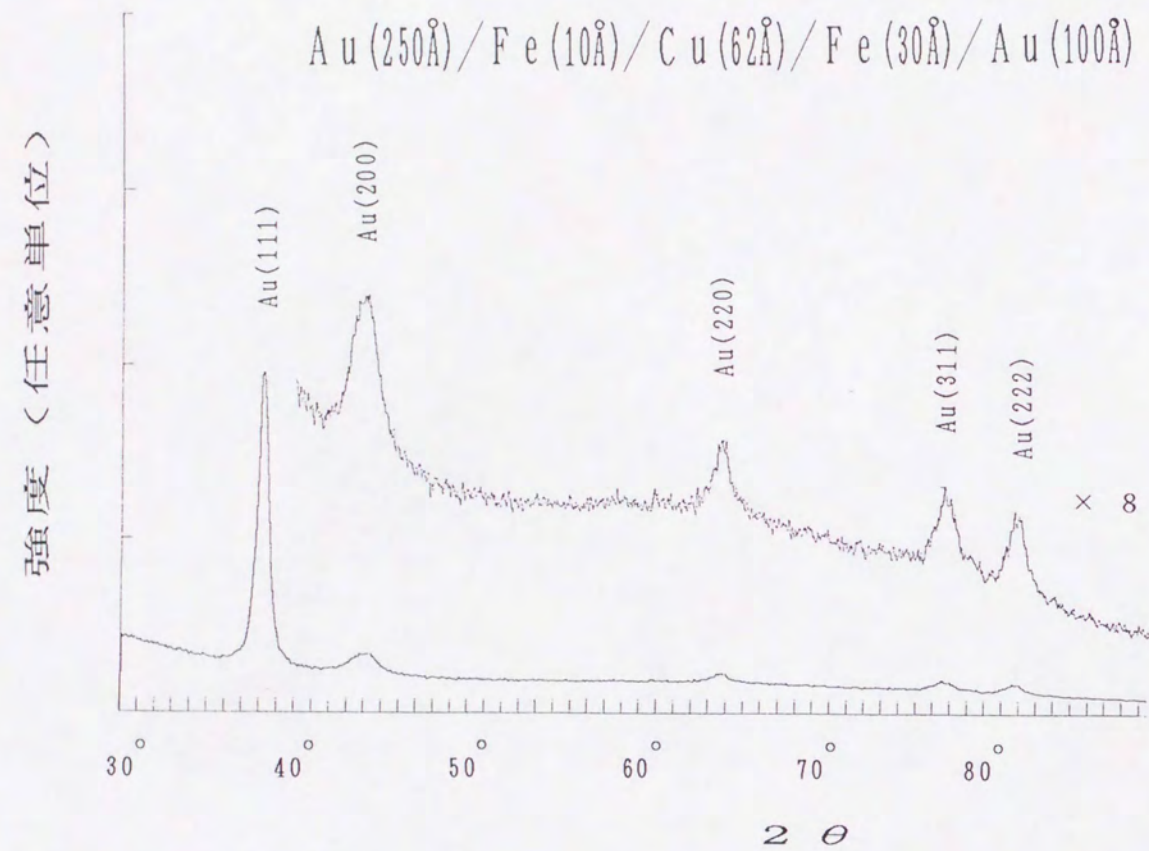


図3 Fe / Cu / Fe 三層膜試料の  
X線回折パターン

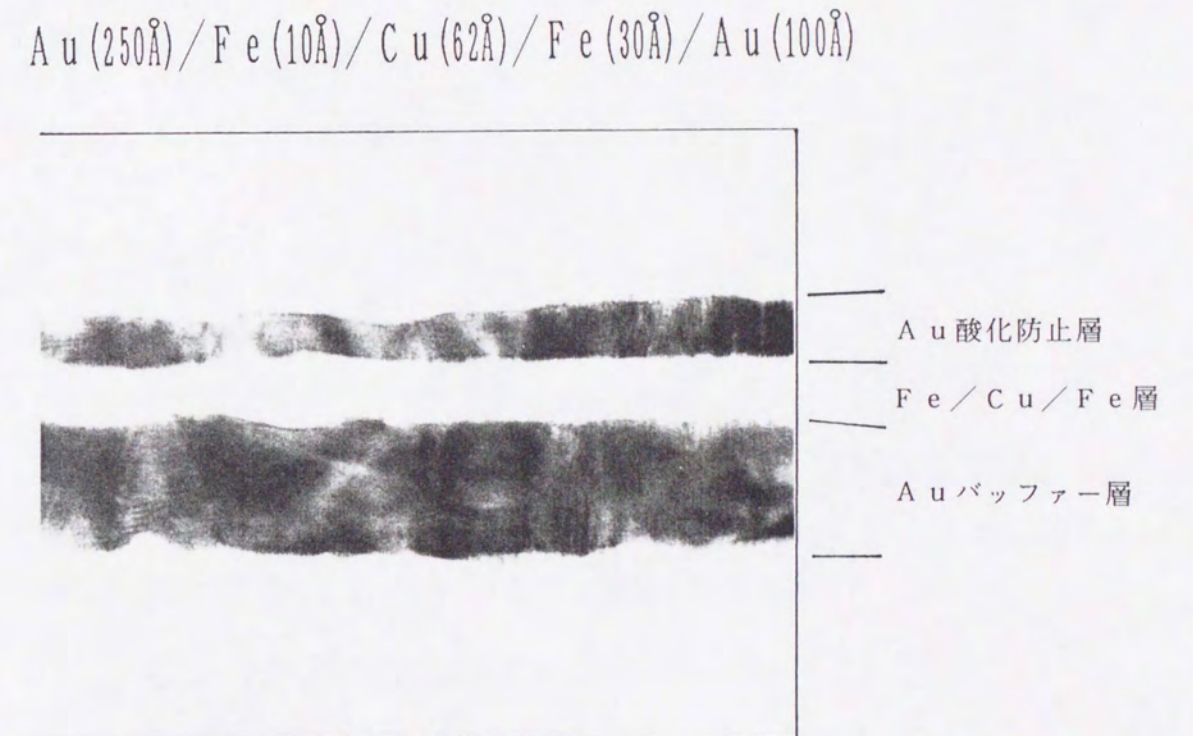
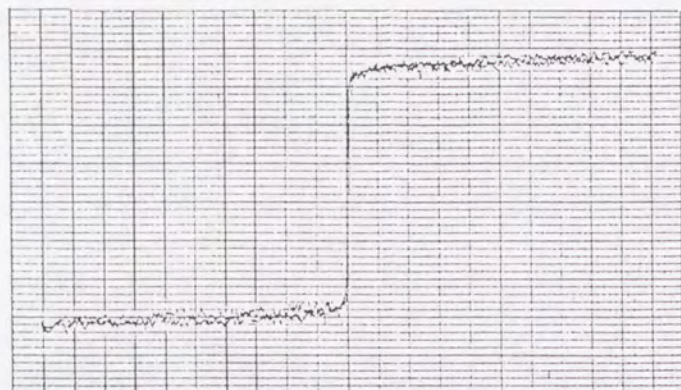


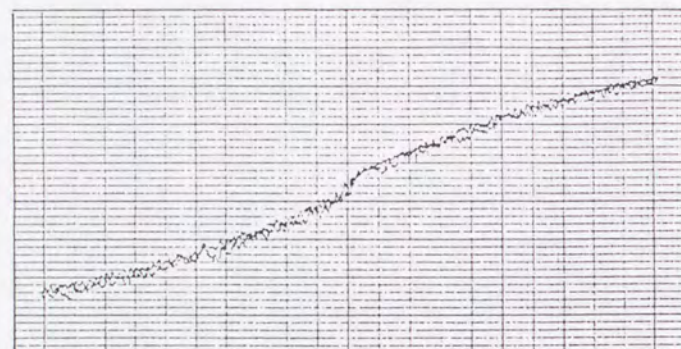
図4 Fe / Cu / Fe 三層膜試料の  
透過電子顕微鏡による断面観察



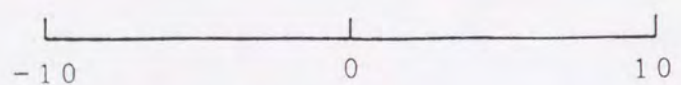
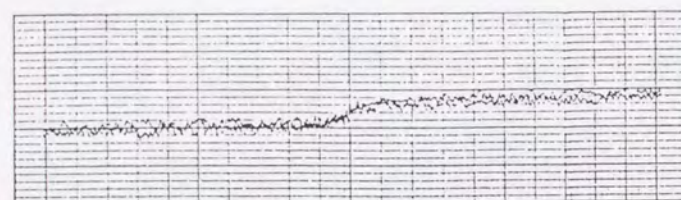
磁場 // 膜面



磁場 ⊥ 膜面



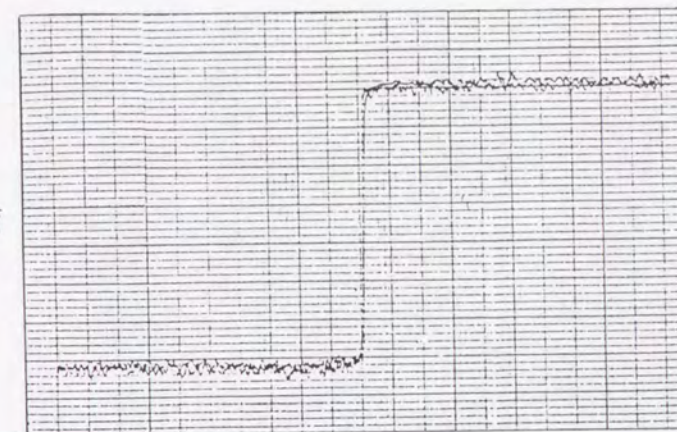
磁場 // 膜面  
基板のみ



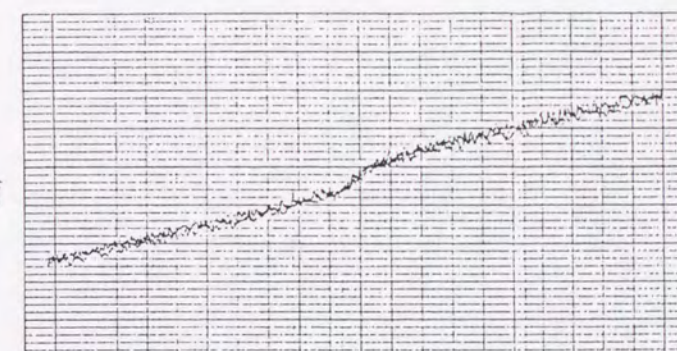
磁場 (kOe)

図 5 (a)  $\text{Au}/\text{Fe}(10\text{\AA})/\text{Au}$  試料の磁化曲線

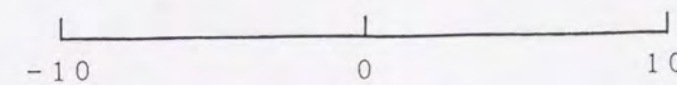
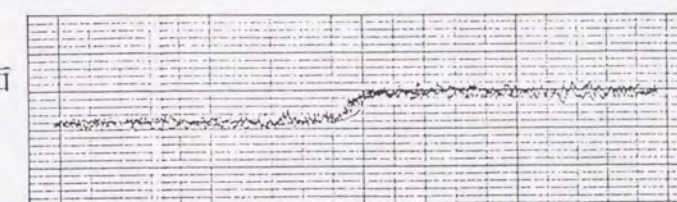
磁場 // 膜面



磁場 ⊥ 膜面



磁場 // 膜面  
基板のみ



磁場 (kOe)

図 5 (b)  $\text{Au}/\text{Fe}(30\text{\AA})/\text{Au}$  試料の磁化曲線



(30 Å) / Au 試料の磁場を膜面内と膜面に垂直の二方向にかけた場合の VSM の測定結果を示す。磁化の絶対値を求めるために、SQUID を用いて測定した 1 kOe の磁場を膜面内にかけたときの磁化の値を表 2 に示す。1 kOe の磁場は X バンド ESR で強磁性共鳴モードを観測する場合にシグナルの現れる共鳴磁場にはほぼ対応する。磁化の絶対値を求める場合には、測定する試料の面積などに誤差が入りやすく、かつ単層膜であるために測定値そのものが小さいので、値そのものの信頼性はあまり高くないが、Fe (10 Å) 層の場合でもほぼバルク bcc Fe の飽和磁化 1710 Gauss に近い値が得られているのがわかる。これは多層膜による磁化測定の結果 [7] とほぼ一致している。どの試料も保磁力は 20 Oe 程度で、明かな強磁性を示している。

Fe 層内の磁化の分布、特に界面付近での Fe 層の磁化の減少が起こっていないかを調べるために、Fe / Au 多層膜試料のメスバウアースペクトルを観測した (図 6)。

Fe 単層膜試料ではシグナル強度をかせぐことがとても出来ないので、多層化して更に試料全体を折り畳んで測定を行った。膜面が  $\gamma$  線に対して垂直になるように試料を設置した。測定温度は室温である。Fe (10 Å) 層を含む試料も Fe (30 Å) 層を含む試料も 3 : 4 : 1 : 1 : 4 : 3 の強度比の 6 本の吸収ピークを示し、内部磁場が膜面内方向を向いていることがわかる。常磁性成分はみられない。Fe (10 Å) 層を含む試料に対して 6 本のピークでフィッティングを行ったが、十分に測定結果を説明している。内部磁場の値はバルク値とほぼ一致している。Fe (10 Å) 層、Fe (30 Å) 層ともに層全体にわたって一様に、バルク bcc Fe とほぼ同じ磁気モーメントをもって磁化していると結論できる。

単層膜試料	磁化 (Gauss)
Au / Fe (10Å) / Cu	1530
Cu / Fe (30Å) / Au	1700
Au / Fe (10Å) / Ag	1670
Ag / Fe (30Å) / Au	1700
Au / Fe (10Å) / Au	1700
Au / Fe (30Å) / Au	1700

表 2 SQUID で測定した  
1 kOe の磁場を膜面内にかけたときの  
磁化の値



### § 3 実験および実験結果

#### 3. 1 磁気共鳴実験に関する序説

1945年にスタンフォード大学の Blochに指導されたグループが、また同じ頃ハーバード大学の Purcell, Bloembergenらが核磁気共鳴 (nuclear magnetic resonance [NMR]) の理論と実験に成功した。一方ソ連では Zavoiskyが銅塩の電子スピン共鳴 (electron spin resonance [ESR]) を試みて常磁性共鳴 (electron paramagnetic resonance [EPR]) が起きることを見いだしている。磁気共鳴が見いだされてから、これが物質のミクロな情報を得るための有力な手段であることが明らかとなっていた [8]。

この研究に最も関係のある強磁性共鳴 (ferromagnetic resonance [FMR]) に関しては、英国の Griffithsが強磁性体でも磁気共鳴がみられることを見だし、Kittelがその本質を指摘したことから始まった。常磁性体と違って強磁性体では、磁気モーメント間の強い交換相互作用のため磁気モーメントは互いに強く結合し、全体として巨視的なモーメントを作っていると見なしてよい。このモーメントが反磁場及び磁気異方性を含んだ有効磁場のもとでラーマー才差運動をすると考えればよい。特に反磁場の影響を考慮した Kittelの式 [9] は現在でもそのまま用いられている。特に薄膜あるいは層間の相互作用が無視できるとみなせる多層膜に於いては、「十分に薄い円盤状試料の場合」として Kittelの式が用いられる。Au上のCo薄膜における強磁性共鳴を解釈するにあたって、Chappertら [10] は一軸異方性エネルギーを2次の項まで考慮し、磁気モーメントが外部磁場に平行でない場合に一般化した Kittelの式を用いて実験結果をうまく説明でき

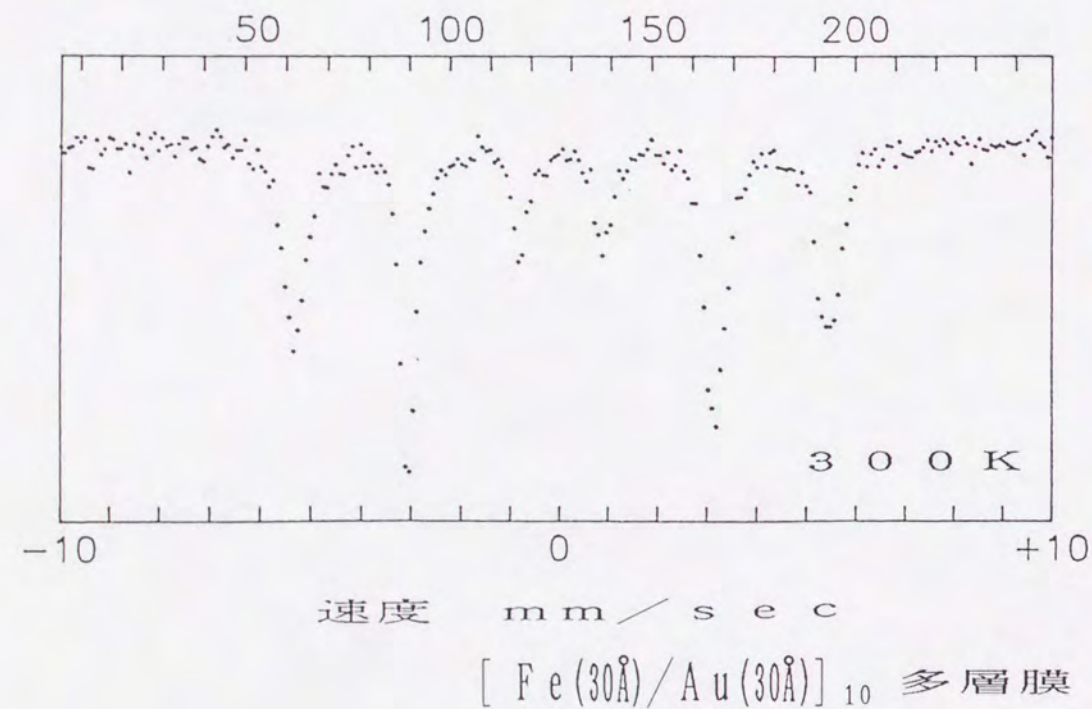
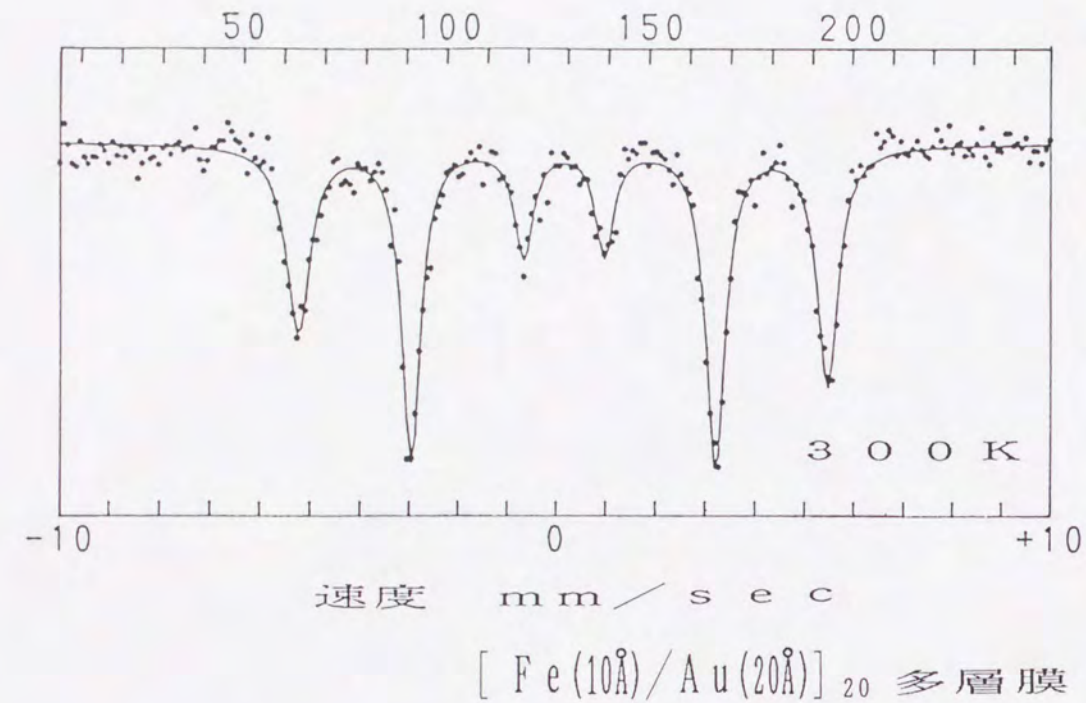


図 6 Fe (10 Å) 層と Fe (30 Å) 層  
のメスバウアースペクトル



た。私自身もMn/Sb, Fe/Mg人工格子の強磁性共鳴実験に於て、実験結果を彼らと同様な方法で解析した[11, 12]。

磁性層間の相互作用に関しては、Cをはさんだ2つのFe層の強磁性共鳴において、Fe層間の磁氣的相互作用を考慮すれば実験結果を説明できることをPomerantzら[13]が1987年に指摘したのが最初である。彼らの仕事を幾分詳しく紹介する。彼らは

(a) 試料:  $C/Fe(17\text{\AA})/C(10\text{\AA})/Fe(12\text{\AA})/C$ ,

(b) 試料:  $C/Fe(17\text{\AA})/C(\sim 0\text{\AA})/Fe(12\text{\AA})/C$

という二種類の試料を、 $1 \times 10^{-6}$  Torrの真空下と $3 \times 10^{-6}$  Torrより悪い真空下で作製し、合計4種類の試料を作製した。良い真空下で作った(a)試料では2つの分離されたシグナルが観測され、同じ条件下の(b)試料では(a)試料で観測された2つのシグナルより低磁場に単一のシグナルが観測された。これはFe層間のCをほとんど0にしたために、 $17+12=29\text{\AA}$ の単一Fe層ができたと考えれば説明がつく。一方、悪い真空下で作製した試料に関しては、(a)試料はやはり2つの分離されたシグナルを示したが、(b)試料ではそれら2つのシグナルの間の磁場位置に単一のシグナルが観測された。この測定結果を説明するために、彼らは悪い真空下で作製した(b)試料は構造的に2つの別々のFe層からなり、それらが磁氣的に強く結合したために新しい結合モードが出現したと解釈した。彼らはこの結合を交換相互作用の形で取り入れてモデル計算を行い、実験結果の再現に成功した。この論文以降、それまではブリュアン散乱での実験が多かった層間相互作用の研究に強磁性共鳴も利用されるようになり、磁性層間の相互作用を交換相互作用として取り入れて解析されることが多くなった。Heinrichら[14, 15]

は分子線エピタキシー法によって作製した単結晶に近い試料を用いて強磁性共鳴とブリュアン散乱を観測した。彼らは詳細な理論的検討を行い、実験で得られたシグナルを理論的に再現するのに成功した。層間相互作用を考慮した強磁性共鳴の理論的考察に関しては、彼ら以降の研究者は彼らの考察に負うところが大きい。強磁性共鳴を利用した層間相互作用の研究はここ5年くらいの間に進んだ分野であり、系統だった試料で強磁性共鳴を観測しているグループは国内では他にはない。世界的にも数グループといってもよいであろう。この理由は、磁気共鳴と薄膜あるいは多層膜の両方に興味のある研究者が余り多くないことにある。薄膜や多層膜の研究にESRを用いるのは、ある意味では「鶏を裂くのに牛刀を用いる」感じがしないでもない。特に強磁性共鳴ではESR特有の美しさが見られず、多くの場合は物理量を議論するのに「有効・・・」という表現を用いざるをえないのももどかしい気がする。しかし余り多くの研究者が参入していない分野ほどこれからの開拓の余地があるといえるだろう。



### 3. 2 実 験

強磁性共鳴の観測にはXバンドの標準的な反射型ESRスペクトロ・メーターを使用した。マイクロ波空洞共振器はTE<sub>011</sub>円筒型キャビティーをつかい、マイクロ波の周波数は空洞周波数計によって読み取った。外部静磁場の値はガウスメーターによって補正を行った。測定に於いては、100kHzの高周波磁場によって磁場変調をかけ、吸収スペクトルの一次微分カーブを観測した。

測定する試料はポリイミド基板に蒸着した試料から3mm×6mmの長方形の小片を10枚切り取り、S/N比を上げるために真空グリスでそれらを貼り合わせて使用した。貼り合わされた試料は、角度読み取り器付きの自由に回転できるホルダーの先端の平らな面に固定された(図7)。試料と外部静磁場Hの方向、マイクロ波の高周波磁場hの方向及び座標系の関係を図8に示す。静磁場Hと高周波磁場hはどちらもつねに試料の膜面内にかけ、2つは常に直交している。静磁場Hを正確に面内にもってくるために、真の0°(面内)と思われる付近でホルダーを1°ずつ回し、共鳴磁場が最小値をとる角度をもって0°とした。外部磁場が真の面内からずれていると反磁場効果によって共鳴磁場は高くなるからである。

次に測定条件をまとめて示す。

測定周波数 : ~ 9.1 GHz

測定温度 : 主に300K(室温), 一部4.2K

外部静磁場範囲 : 1 kOe ± 1 kOe (0 - 2 kOe)

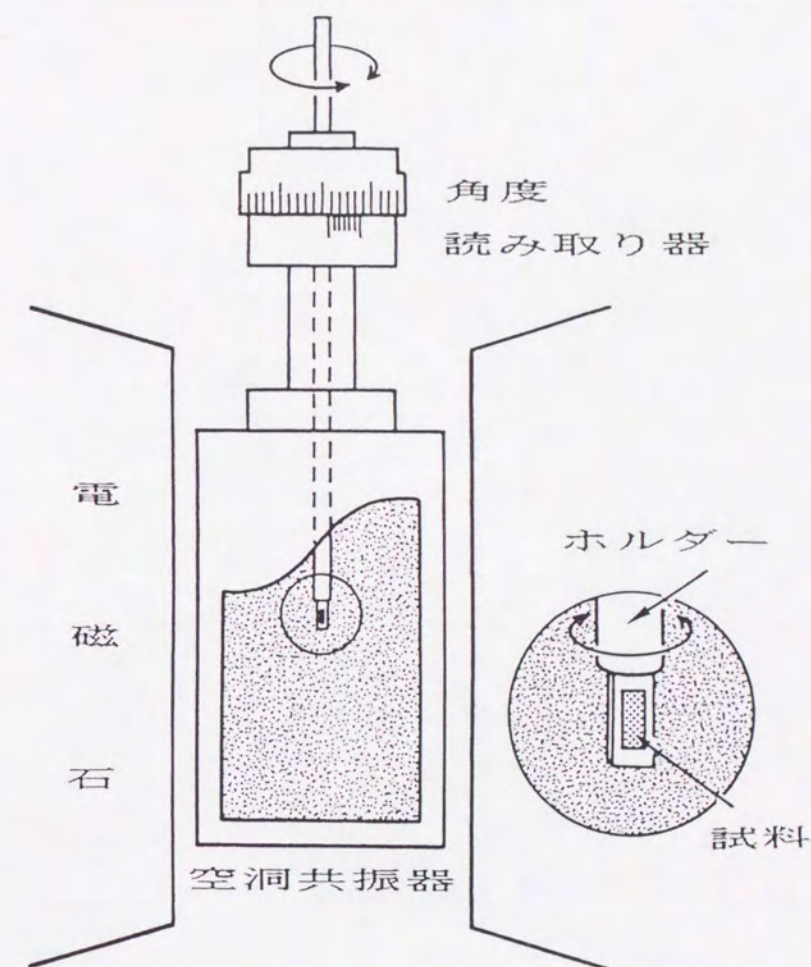


図7 ESR装置における  
試料固定の概念図



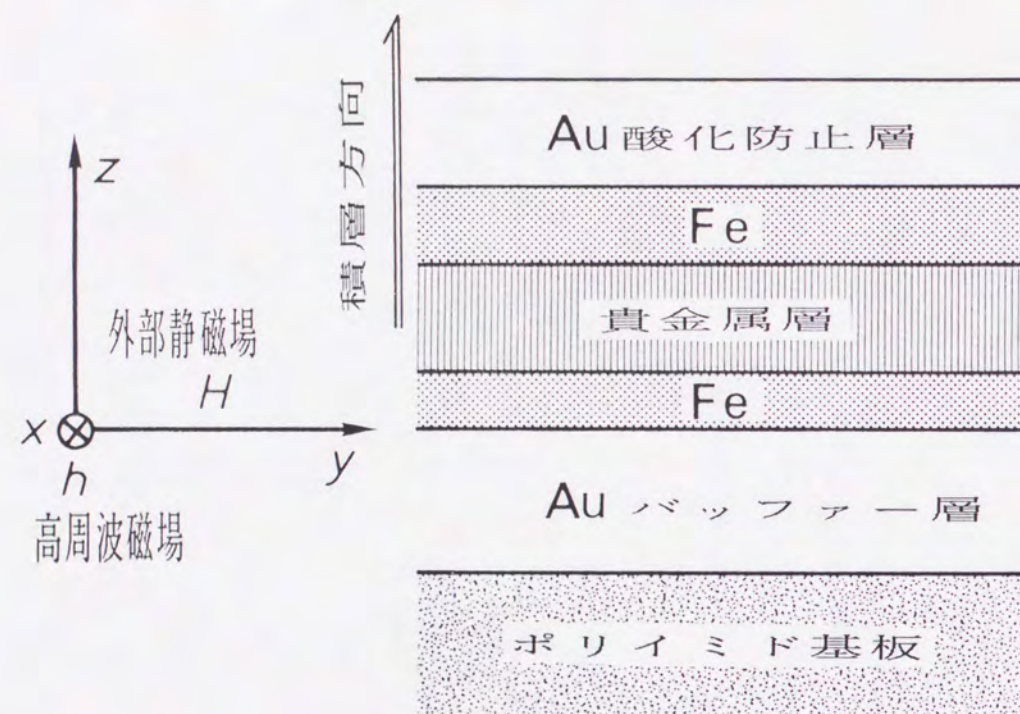


図 8 試料と外部静磁場  $H$ ，高周波磁場  $h$  及び座標軸との方向関係

磁場掃引時間 : 8 分 (250 Oe/分)

磁場変調 : 100 kHz で 0.25 Oe

レスポンス : 0.1 sec.

マイクロ波出力 : 10 mW

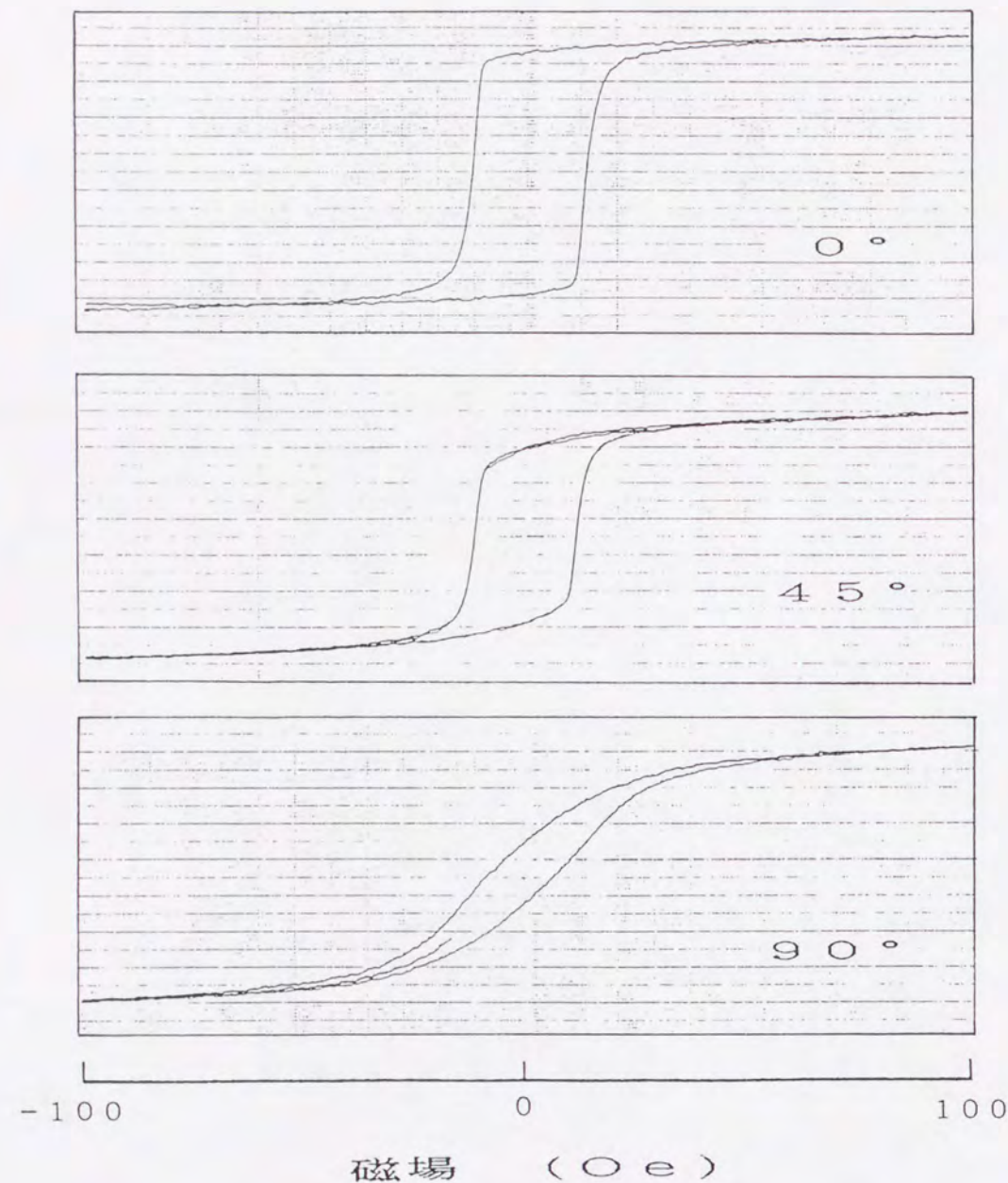
低温での測定では、OXFORD社製のクライオスタットを使用した。このクライオスタットはHeガス流量を調節することにより、室温から3.5 Kまでの範囲で温度設定が出来る。

試料が繊維構造をもつのでFe層の膜面内での磁気異方性は平均化されて無くなってしまっているであろうと予想されるが、念のため単層膜の試料をホルダー先端の面内でおよそ45°ずつ回転させ共鳴磁場を測定してみた。その結果わずかながら面内一軸異方性があるようで、 $\pm 15$  Oe の範囲内で、共鳴磁場がおよそ180°周期で変化した。

この面内一軸異方性はヘルムホルツコイルを用いた磁化測定でも三層膜試料において見いだされている(図9)。この結果は、非晶質基板を用いた試料でも完全には面内異方性を無視できないことを示している。共鳴磁場を読み取る場合には $\pm 20$  Oe 程度の不定性は見込んでおかなければならないであろう。測定する長方形の小片はポリイミド基板からいつも同じ方向で切り取ることにするが、試料は膜面に垂直な一軸異方性のみを有すると考え、静磁場の膜面内での方向の違いによる共鳴磁場の違いは誤差に含めて考えることにする。



Fe (30Å) / Au (60Å) / Fe (10Å)



3つの磁化カーブはすべて磁場を膜面内にかけて測定したが、膜面内での方向が違ふ。一番上の測定における方向を仮に0°とした。

図9 Fe / Au / Fe 三層膜試料  
における面内磁気異方性

### 3.3 実験結果

室温における強磁性共鳴実験によって得られた吸収スペクトルの一次微分カーブの典型的なものを図10 (a), (b), (c)に示す。Cu, Ag, Au三つの系を通じて全般的にいえることは、貴金属層厚dが十分に大きいときはFe (30Å)層とFe (10Å)層の固有の共鳴磁場（単層膜試料でえられた共鳴磁場）付近に2つのシグナルが観測される。貴金属層厚dが小さくなるにつれて、特に高磁場側のシグナルの位置が低磁場へ下がり、同時にそのシグナル強度が強くなる。逆に低磁場側のシグナルは徐々に共鳴磁場を低磁場へ下げながらシグナル強度が弱くなる。CuとAuに関しては20 Å程度で、Agに関しては50 Å程度で上下2つのシグナル強度がほぼ等しくなり、それ以下の層厚では低磁場側のシグナル強度は急に低下し、低磁場へ急激にシフトする。同時に高磁場側のシグナルの強度が増大する。Cuでは  $d_{Cu} < 18 \text{ Å}$ , Agでは  $d_{Ag} < 42 \text{ Å}$ , Auでは  $d_{Au} < 19 \text{ Å}$ において、単一のシグナルしか観測されない。これらの単一のシグナルも貴金属層厚が小さくなるにつれさらに徐々に低磁場へシフトしていくのがわかる。

4. 2 Kで行った実験では、高磁場側・低磁場側両方のシグナルにおいて室温で得られた共鳴磁場より10~20 Oeの共鳴磁場の低下が見られるのみであった。これは単一層のFeの場合にも観測されており、Fe層間の相互作用の変化というよりもFe層自身の共鳴磁場の温度変化によるものと考えられる。

チャートから読み取った共鳴磁場値と高磁場・低磁場2つのシグナルの強度比：強度（低磁場）／強度（高磁場）を図11 (a), (b), (c)に示す。上に述べたシグナルの位置及び強度比の変化が定量的にも確認される。図11のなかで貴金属層厚と強度比の関



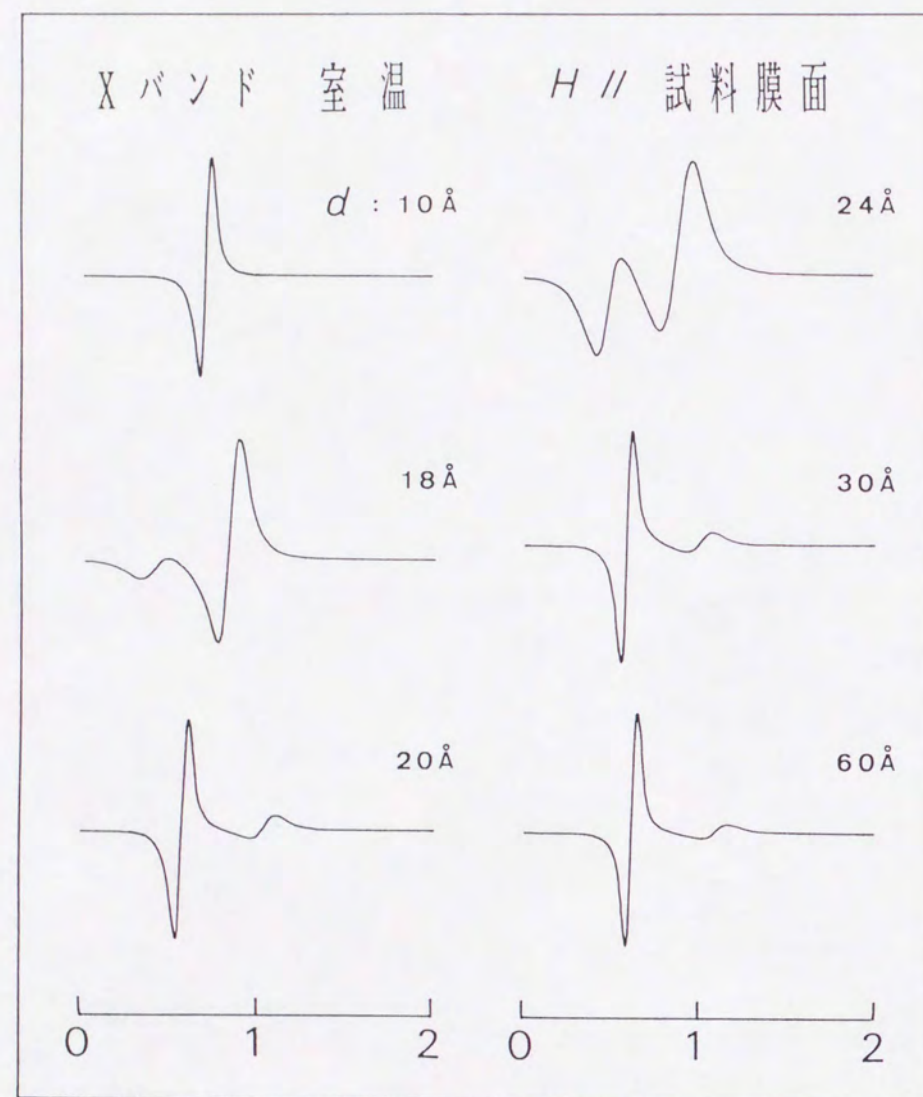


図 1 0 (a)  $\text{Fe}/\text{Cu}/\text{Fe}$  三層膜試料の典型的な強磁性共鳴スペクトル

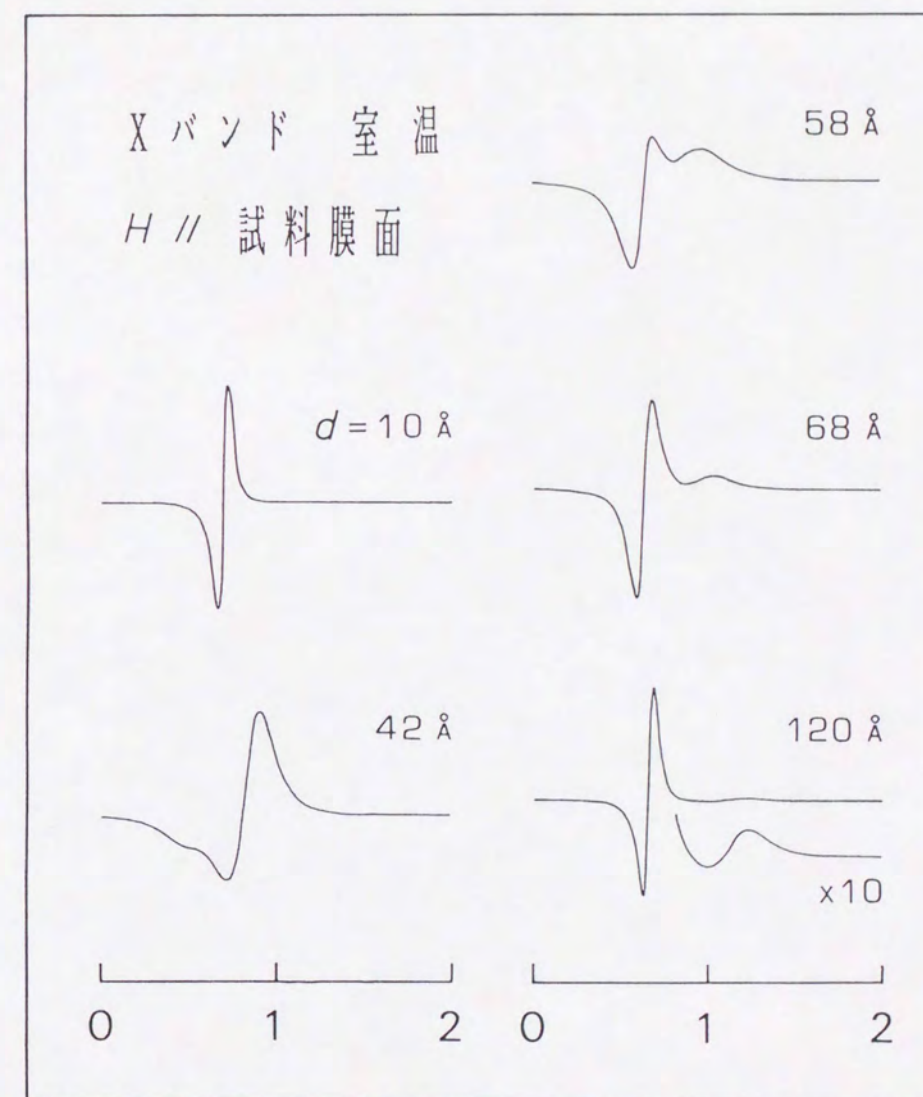
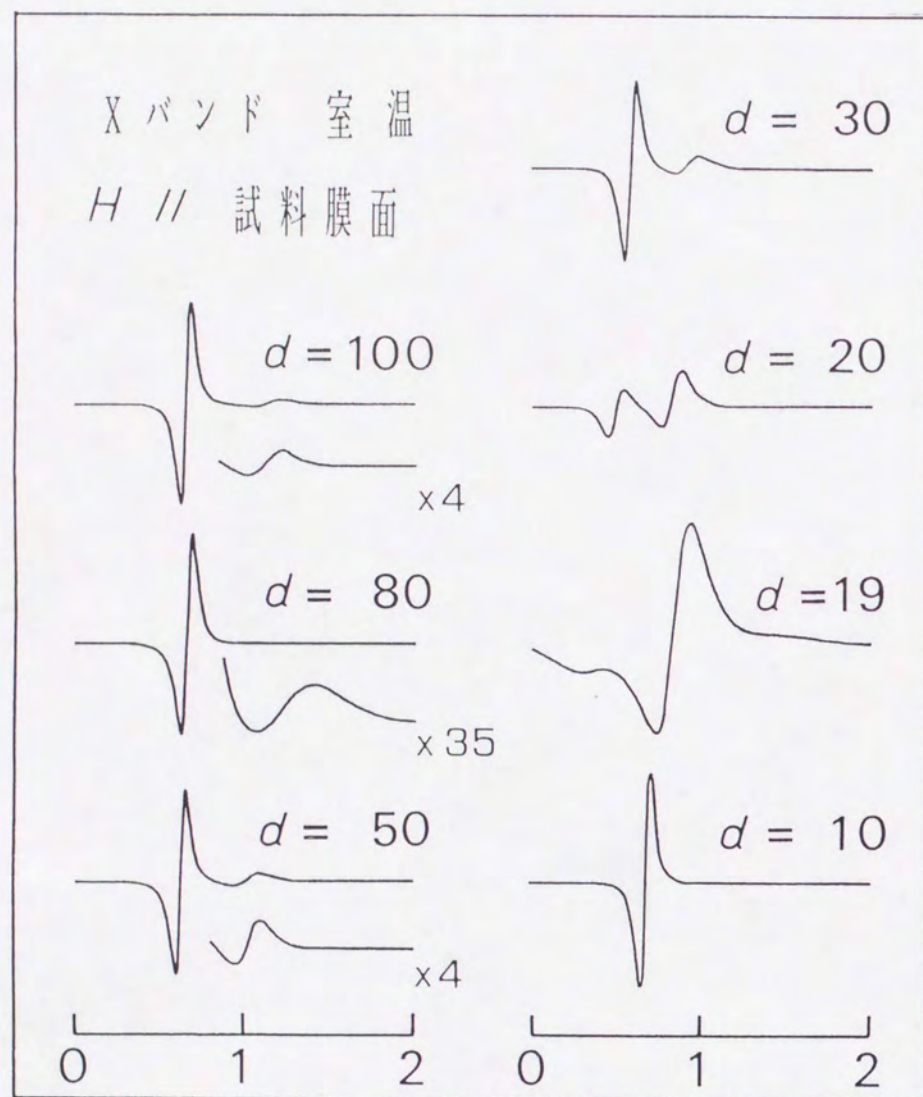


図 1 0 (b)  $\text{Fe}/\text{Ag}/\text{Fe}$  三層膜試料の典型的な強磁性共鳴スペクトル





外部磁場 (kOe)

図10(c) Fe/Au/Fe三層膜試料の典型的な強磁性共鳴スペクトル

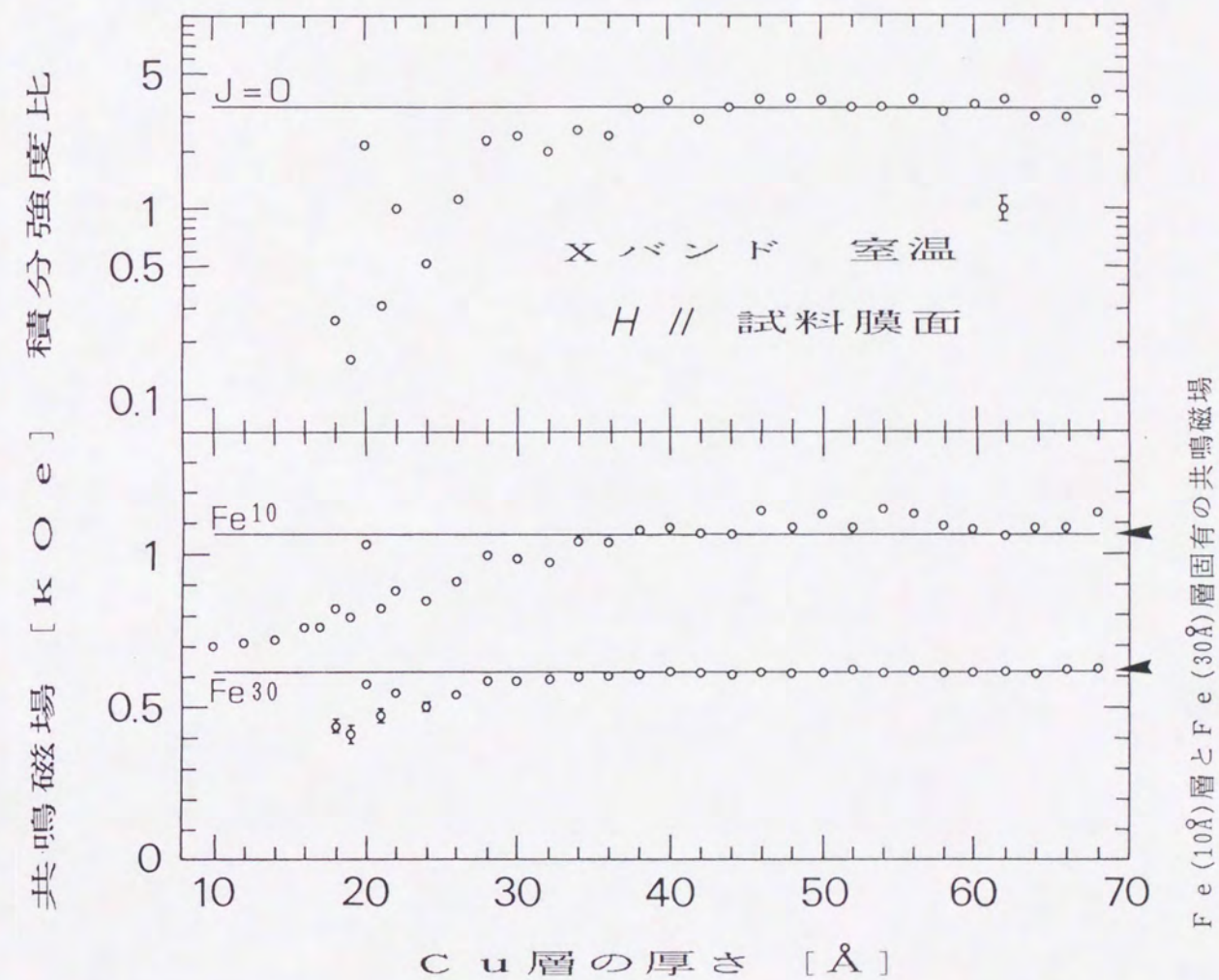


図11(a) Fe/Cu/Fe三層膜試料におけるCu層の厚さと共鳴磁場・シグナル強度比の相関



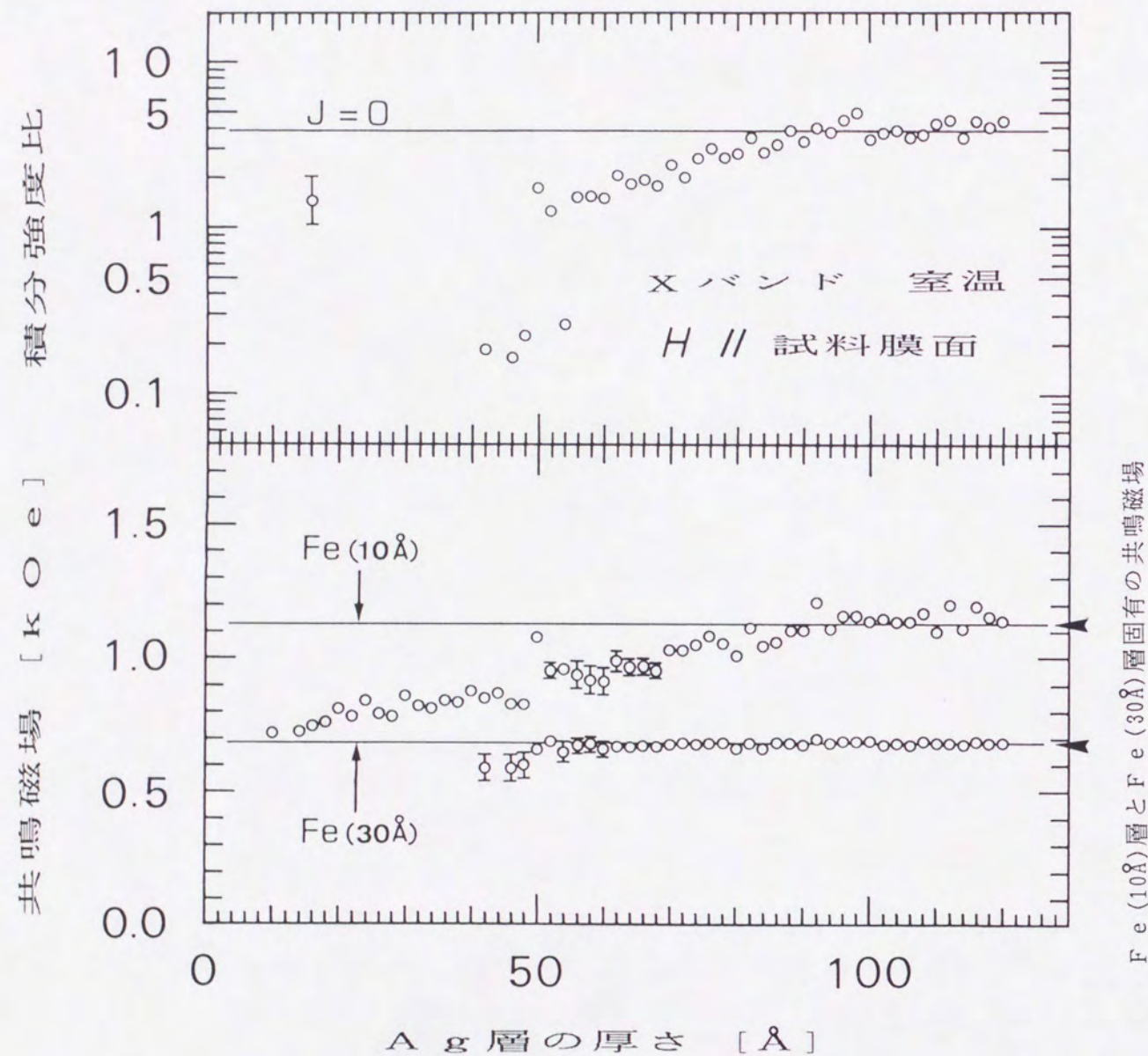


図 1.1 (b) Fe / Ag / Fe 三層膜試料  
における Ag 層の厚さと  
共鳴磁場・シグナル強度比の相関

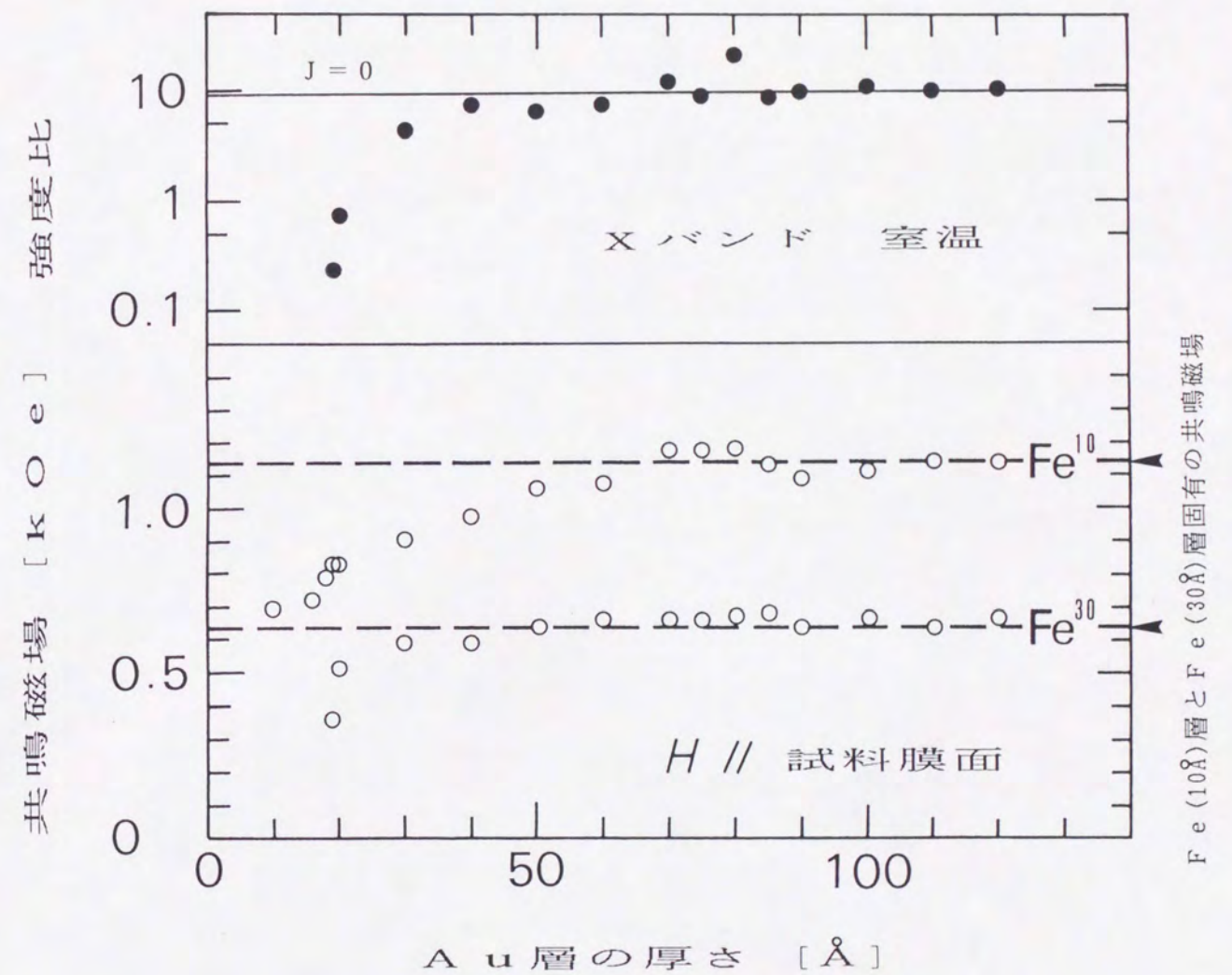


図 1.1 (c) Fe / Au / Fe 三層膜試料  
における Au 層の厚さと  
共鳴磁場・シグナル強度比の相関



係を示す図中の  $J = 0$  の線は、2つの Fe 層間に相互作用が無い三層膜試料における上下2つのシグナルの強度比の平均値を示す。相互作用が無い試料とは、上下2つの共鳴磁場が共に Fe 単層膜試料の共鳴磁場と  $\pm 10 \text{ Oe}$  の範囲で一致する試料を意味する。単層膜の測定では、Fe (30Å) 層と Fe (10Å) 層に関して別々に測定を行うため、強度の比較が困難であるため、このような方法によって  $J = 0$  でのシグナル強度比を決めた。貴金属層厚  $d$  の小さいときに見られる単一のシグナルに注目すると、三つの系全てにおいて Fe (10Å) 層と Fe (30Å) 層の固有の共鳴磁場の間に落ち着くようであり、 $d$  が小さいときでも決して2つの Fe 層がつながって  $40 \text{ Å}$  の Fe 層になっているのではないことを示唆している。もし構造的にもつながって  $40 \text{ Å}$  の Fe 層になっているのなら、共鳴磁場の位置は Fe (30Å) 層の共鳴磁場よりも更に低磁場に現れるからである。Fe 層厚が大きいほど共鳴磁場が低いことは単一の Fe 層の予備実験で確認されている。

表3にレファレンス用の試料として作製した Fe (10Å) 層及び Fe (30Å) 層の共鳴磁場、シグナルのピーク間隔で読んだ線幅を示す。共鳴磁場値は3つの系であまり違いはないが、 $10 \text{ Å}$ 、 $30 \text{ Å}$  の両方において、Cu に対するレファレンス試料の共鳴磁場が Ag や Au に対するレファレンス試料の共鳴磁場より低いことがわかる。この結果は、同じ Fe 層でもそれに接している金属の違いによって Fe 層の磁気異方性に違いがでることを示唆している。線幅に関しては、Fe (10Å) 層の線幅に目立った差がでているのは興味深い。Fe / Ag 多層膜では Fe / Au 多層膜ほどきれいな層構造をとらないという報告もあるので、この線幅の違いは Fe 層と貴金属層との界面における構造の乱れの違いに基づくものかもしれない。単一磁性層試料の物性も非常に興味のある対象であるが、

		マイクロ波周波数 [GHz]	共鳴磁場 [kOe]	線幅 [kOe]
Fe/Cu/Fe用 ν <sub>77</sub> ν <sub>78</sub>	Au / Fe (10Å) / Cu	9.105	1.065	0.130
	Cu / Fe (30Å) / Au		0.615	0.050
Fe/Ag/Fe用 ν <sub>77</sub> ν <sub>78</sub>	Au / Fe (10Å) / Ag	9.125	1.130	0.215
	Ag / Fe (30Å) / Au		0.685	0.060
Fe/Au/Fe用 ν <sub>77</sub> ν <sub>78</sub>	Au / Fe (10Å) / Au	9.105	1.140	0.095
	Au / Fe (30Å) / Au		0.640	0.045

表3 レファレンス用 Fe 単層膜試料の強磁性共鳴



この研究では詳しく扱わない。なおマイクロ波の周波数が  $\text{Fe}/\text{Ag}/\text{Fe}$  系の場合だけ高いが、これはこの試料が三つの系では最後に測定を行ったものであり、測定前に ESR のキャビティを調整し直した為である。この程度の周波数の違いは、三つの系を比較する上でほとんど影響はないはずである。

## § 4 解析

### 4. 1 モデル設定及び解析に用いる式の導出

実験によって得られた強磁性共鳴の結果を解析するにあたって、まず簡単なモデルを設定する。構造に関しては、実際の試料では  $\text{Fe}$  層と貴金属層の界面は完全なものではないだろうが、ここでは完全に平坦で拡散などは起きていないと考える。つまり図 8 に示した模式図のように、各層の厚さはどこでもすべて一定で、理想的な層構造をなしているものとする。磁性に関しては、2 つの  $\text{Fe}$  層は各々の厚さ全部にわたって一様に磁化されているものと見なす。これはメスバウアースペクトルの観測から肯定できる。2 つの  $\text{Fe}$  層はともに面内が磁化容易方向となっているので、磁気モーメントは外部磁場に平行であると考えて良い。このことはこの強磁性共鳴測定で関係する磁場領域で成立することが VSM の測定結果からわかっている。従って共鳴を起こすときは、磁気モーメントは外部磁場の方向のまわりに微小振動すると考えることができる。更に、共鳴モードは各  $\text{Fe}$  層内においては完全な波数  $q = 0$  のモードが起きているとする。つまり界面でのピンニング効果等によって膜に垂直方向に  $q \neq 0$  のスピン波が立ったりはしないということである。但し  $\text{Fe}(10\text{\AA})$  層と  $\text{Fe}(30\text{\AA})$  層とで才差運動の位相が違っていても構わない。最も重要な  $\text{Fe}$  層間の相互作用は、2 つの  $\text{Fe}$  層の内側の界面に於て交換相互作用の形で行われるとし、いわば境界条件の形で取り入れることにする。

以上述べたモデルに基づいて解析に用いる式を導出する。以下の物理量につく 10, 30 は各々  $\text{Fe}(10\text{\AA})$  層と  $\text{Fe}(30\text{\AA})$  層に関係した物理量であることを示す。両方について



同じ式が成立する場合は  $i$  で代表する.

まず基本となる式はトルク方程式である.

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\partial \mathbf{M}^i}{\partial t} = \mathbf{M}^i \times \mathbf{H}_{\text{eff}}^i \quad (1)$$

但し磁気回転比  $\gamma$  は負とし, 2つの層で同じ値をとるとした. 磁気モーメント  $\mathbf{M}^i$  は外部磁場方向 ( $y$  軸方向) の時間的に変動しない  $\mathbf{M}_s^i = (0, M_s^i, 0)$  と時間的に変動する  $\mathbf{m}^i = (m_x^i, 0, m_z^i)$  とに分けられ,  $\exp(i\omega t)$  の時間依存性をもつ.

有効磁場  $\mathbf{H}_{\text{eff}}^i$  は次の5つの項を含む.

$$\mathbf{H}_{\text{eff}}^i = H_y \mathbf{y} + h \mathbf{x} + 4\pi D^i m_z \mathbf{z} + \frac{2A^i}{(M_s^i)^2} \nabla^2 \mathbf{M}^i - \frac{G^i}{(\gamma M_s^i)^2} \frac{\partial \mathbf{M}^i}{\partial t} \quad (2)$$

第1項は外部静磁場, 第2項は高周波磁場を表す.  $h$  は  $\exp(i\omega t)$  の時間依存性をもつ.

第3項は磁気異方性の影響と薄膜という形状に由来する反磁場を一つにした有効反磁場を表す.  $D^i$  は有効反磁場係数である. 異方性磁場が反磁場と同じ形に表せることをつぎに示す.

異方性を一軸異方性とする, そのエネルギー  $E_a$  はよく知られた

$$E_a = -K_1 \cos^2 \theta - K_2 \cos^4 \theta \quad (3)$$

の形で表せる.  $K_1, K_2$  は一軸異方性定数,  $\theta$  は膜に垂直な軸から測った磁気モーメ

ントの角度を表す. 一方膜面に垂直に異方性磁場  $H_a$  があると考えれば,

$$E_a = -M H_a \cos \theta \quad (4)$$

(3), (4) 式を  $\cos \theta$  で変分をとると, それぞれ

$$\delta E_a = - (2K_1 \cos \theta + 4K_2 \cos^3 \theta) \delta (\cos \theta) \quad (3')$$

$$\delta E_a = -M H_a \delta (\cos \theta) \quad (4')$$

(3') と (4') を比較して

$$H_a = (2K_1 / M) \cos \theta + (4K_2 / M) \cos^3 \theta$$

次に磁気モーメントがほとんど膜面内にあり,  $\theta = \pi/2 - \delta$  ( $\delta \ll 1$ ) とすると,

$$\cos \theta = \cos (\pi/2 - \delta) \sim \delta$$

であるから

$$\begin{aligned} H_a &\sim (2K_1 / M) \delta \sim (2K_1 / M) \sin \delta = (2K_1 / M^2) M \sin \delta \\ &= 4\pi (K_1 / 2\pi M^2) M^\perp = 4\pi D M^\perp \end{aligned}$$

$M^\perp$  は膜面に垂直な磁気モーメントの成分を表す.

再び(2)式にもどる. 第4項は磁化を連続体近似した場合の交換相互作用による有効磁場を表す [16].  $A^i$  は交換相互作用係数である. 第5項はギルバートの減衰項



と呼ばれ、磁気モーメントが大きさを保ったまま緩和する影響を考慮したものである。

つまり減衰自体を時間的に変動する有効磁場と見なしている。  $G^i$  はギルバート減衰係数である。

$m_x^i$ ,  $m_z^i$  が膜面内方向 (x y 面内) で一定であること、および  $M_s^i$  が各 Fe 層内では一定で時間的に変動しないことに注意して、有効磁場  $H_{eff}^i$  を各成分について書くと

$$H_{eff}^i = \begin{pmatrix} h + \frac{2A^i}{(M_s^i)^2} \frac{\partial^2 m_x^i}{\partial z^2} - i\omega \frac{G^i}{(\gamma M_s^i)^2} m_x^i \\ H \\ 4\pi D^i m_z^i + \frac{2A^i}{(M_s^i)^2} \frac{\partial^2 m_z^i}{\partial z^2} - i\omega \frac{G^i}{(\gamma M_s^i)^2} m_z^i \end{pmatrix} \quad (5)$$

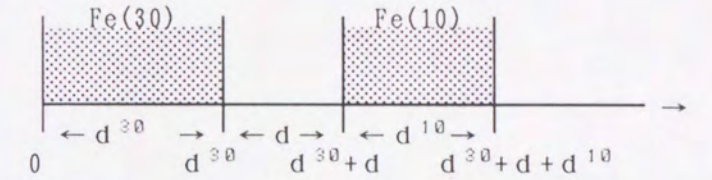
(5)式と(1)式より運動方程式を各成分について書くと、

$$\frac{i\omega}{\gamma} m_x^i = M_s^i \left[ 4\pi D^i m_z^i + \frac{2A^i}{(M_s^i)^2} \frac{\partial^2 m_z^i}{\partial z^2} - i\omega \frac{G^i}{(\gamma M_s^i)^2} m_z^i \right] - m_z^i H \quad (6)$$

$$\frac{i\omega}{\gamma} m_z^i = m_x^i H - M_s^i \left[ h + \frac{2A^i}{(M_s^i)^2} \frac{\partial^2 m_x^i}{\partial z^2} - i\omega \frac{G^i}{(\gamma M_s^i)^2} m_x^i \right] \quad (7)$$

(6), (7)式を各 Fe 層の厚さにわたって積分する。すなわち Fe (30) 層については 0 から  $d^{30}$  まで Fe (10) 層については  $d^{30}+d$  から  $d^{30}+d+d^{10}$  まで積分する。

右にその関係を詳しくかく。



$\int m_x^i dz = \mathcal{M}_x^i$  などと書くと、

$$\begin{aligned} \frac{i\omega}{\gamma} \mathcal{M}_x^{30} = & 4\pi D^{30} M_s^{30} \mathcal{M}_z^{30} + \frac{2A^{30}}{M_s^{30}} \left[ \frac{\partial m_z^{30}}{\partial z} \Big|_{d^{30}} - \frac{\partial m_z^{30}}{\partial z} \Big|_0 \right] \\ & - i\omega \frac{G^{30}}{\gamma^2 M_s^{30}} \mathcal{M}_z^{30} - H \mathcal{M}_z^{30} \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \frac{i\omega}{\gamma} \mathcal{M}_z^{30} = & H \mathcal{M}_x^{30} - M_s^{30} h d^{30} - \frac{2A^{30}}{M_s^{30}} \left[ \frac{\partial m_x^{30}}{\partial z} \Big|_{d^{30}} - \frac{\partial m_x^{30}}{\partial z} \Big|_0 \right] \\ & + i\omega \frac{G^{30}}{\gamma^2 M_s^{30}} \mathcal{M}_x^{30} \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \frac{i\omega}{\gamma} \mathcal{M}_x^{10} = & 4\pi D^{10} M_s^{10} \mathcal{M}_z^{10} + \frac{2A^{10}}{M_s^{10}} \left[ \frac{\partial m_z^{10}}{\partial z} \Big|_{d^{30}+d+d^{10}} - \frac{\partial m_z^{10}}{\partial z} \Big|_{d^{30}+d} \right] \\ & - i\omega \frac{G^{10}}{\gamma^2 M_s^{10}} \mathcal{M}_z^{10} - H \mathcal{M}_z^{10} \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{i\omega}{\gamma} \mathcal{M}_z^{10} = & H \mathcal{M}_x^{10} - M_s^{10} h d^{10} - \frac{2A^{10}}{M_s^{10}} \left[ \frac{\partial m_x^{10}}{\partial z} \Big|_{d^{30}+d+d^{10}} - \frac{\partial m_x^{10}}{\partial z} \Big|_{d^{30}+d} \right] \\ & + i\omega \frac{G^{10}}{\gamma^2 M_s^{10}} \mathcal{M}_x^{10} \end{aligned} \quad (11)$$



ここで境界条件として2つの条件を要求する。まず外側の界面では”Rado-Weertman の境界条件”：

$$\left. \frac{\partial m_x^{30}}{\partial z} \right|_0 = \left. \frac{\partial m_z^{30}}{\partial z} \right|_0 = 0, \quad (12)$$

$$\left. \frac{\partial m_x^{10}}{\partial z} \right|_{d^{30}+d+d^{10}} = \left. \frac{\partial m_z^{10}}{\partial z} \right|_{d^{30}+d+d^{10}} = 0. \quad (13)$$

これは界面に於てピンニング等による拘束がなく、磁気モーメントが自由であることを意味する。いわゆる界面異方性 [5] があり、ピンニング効果がある場合は界面異方性定数を  $K_s^i$  として、

$$A^{30} \left. \frac{\partial m_z^{30}}{\partial z} \right|_0 = K_s^{30} m_z^{30}(0), \quad (14)$$

$$A^{10} \left. \frac{\partial m_z^{10}}{\partial z} \right|_{d^{30}+d+d^{10}} = -K_s^{10} m_z^{10}(d^{30}+d+d^{10}), \quad (15)$$

となる。 $m_z^i(x)$  は位置  $x$  における  $m_z^i$  の値を表す。しかしここで  $F e(i)$  層内で全ての磁気モーメントが完全に平行になっていると仮定すると、

$$m_z^i = \mathcal{M}_z^i / d^i \quad (16)$$

が成立するから、これを(14), (15)式に代入して得られた微係数を(8), (10)式に代入すると、結局有効反磁場からの影響を表す  $4\pi D^i M_s^i \mathcal{M}_z^i$  に繰り込まれてしまい、ピンニングの効果は一軸の異方性磁場と同等になってしまう。層内の磁気モーメントが全て完

全に平行になって動いていると見なしているの、これは直感的にも明かであろう。従ってこれ以降は、(14), (15)式は用いないで(12), (13)式によって議論を進める。

次に内側の界面では、”Hoffmannの境界条件 [17]” を課す。ここでも(16)式の仮定を入れると、

$$\left. \frac{2 A^{30} \partial m_z^{30}}{M_s^{30} \partial z} \right|_{d^{30}} = J M_s^{30} M_s^{10} \left[ \frac{1}{d^{10}} \frac{\mathcal{M}_z^{10}}{M_s^{10}} - \frac{1}{d^{30}} \frac{\mathcal{M}_z^{30}}{M_s^{30}} \right] = - \left. \frac{2 A^{10} \partial m_z^{10}}{M_s^{10} \partial z} \right|_{d^{30}+d} \quad (17)$$

$$\left. \frac{2 A^{30} \partial m_x^{30}}{M_s^{30} \partial z} \right|_{d^{30}} = J M_s^{30} M_s^{10} \left[ \frac{1}{d^{10}} \frac{\mathcal{M}_x^{10}}{M_s^{10}} - \frac{1}{d^{30}} \frac{\mathcal{M}_x^{30}}{M_s^{30}} \right] = - \left. \frac{2 A^{10} \partial m_x^{10}}{M_s^{10} \partial z} \right|_{d^{30}+d} \quad (18)$$

これらの境界条件は内側の界面に単位面積当り、

$$E_{ex} = -J \mathbf{M}^{10} \cdot \mathbf{M}^{30}$$

のエネルギーがあるとした条件である。(12), (13)式及び(17), (18)式を(8)~(11)式に

代入して整理すると、

$$\frac{i\omega}{\gamma} \mathcal{M}_x^{30} + \left[ H - 4\pi D^{30} M_s^{30} + J \frac{M_s^{10}}{d^{30}} + \frac{i\omega G^{30}}{\gamma^2 M_s^{30}} \right] \mathcal{M}_z^{30} - J \frac{M_s^{30}}{d^{10}} \mathcal{M}_z^{10} = 0 \quad (19)$$

$$\left[ H + J \frac{M_s^{10}}{d^{30}} + \frac{i\omega G^{30}}{\gamma^2 M_s^{30}} \right] \mathcal{M}_x^{30} - \frac{i\omega}{\gamma} \mathcal{M}_z^{30} - J \frac{M_s^{30}}{d^{10}} \mathcal{M}_x^{10} - M_s^{30} d^{30} h = 0 \quad (20)$$

$$\frac{i\omega}{\gamma} \mathcal{M}_x^{10} + \left[ H - 4\pi D^{10} M_s^{10} + J \frac{M_s^{30}}{d^{10}} + \frac{i\omega G^{10}}{\gamma^2 M_s^{10}} \right] \mathcal{M}_z^{10} - J \frac{M_s^{10}}{d^{30}} \mathcal{M}_z^{30} = 0 \quad (21)$$



$$\left[ H + J \frac{M_s^{30}}{d^{10}} + \frac{i\omega G^{10}}{\gamma^2 M_s^{10}} \right] M_x^{10} - \frac{i\omega}{\gamma} M_z^{10} - J \frac{M_s^{10}}{d^{30}} M_x^{30} - M_s^{10} d^{10} h = 0 \quad (22)$$

(19)-(22)式より固有モードを求めるわけだが、このままでは扱いにくいので  $G^i$  の入った減衰項と  $h$  の入った高周波磁場の項を落として、いわば自由才差運動近似を行う。すると (19)-(22)式が自明でない解をもつための必要条件は、次の行列式が 0 となることである。

$\frac{i\omega}{\gamma}$	$H - 4\pi D^{30} M_s^{30} + \frac{J M_s^{10}}{d^{30}}$	0	$-\frac{J M_s^{30}}{d^{10}}$
$H + \frac{J M_s^{10}}{d^{30}}$	$-\frac{i\omega}{\gamma}$	$-\frac{J M_s^{30}}{d^{10}}$	0
0	$-\frac{J M_s^{10}}{d^{30}}$	$\frac{i\omega}{\gamma}$	$H - 4\pi D^{10} M_s^{10} + \frac{J M_s^{30}}{d^{10}}$
$-\frac{J M_s^{10}}{d^{30}}$	0	$H + \frac{J M_s^{30}}{d^{10}}$	$-\frac{i\omega}{\gamma}$

行列式を計算し、 $J$  の次数によってまとめると、

$$\left[ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{30} \right] \cdot \left[ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{10} \right] - J \left[ \frac{M_s^{30}}{d^{10}} (H + B^{10}) \cdot \left\{ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{30} \right\} + \frac{M_s^{10}}{d^{30}} (H + B^{30}) \cdot \left\{ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{10} \right\} \right]$$

$$- J^2 \left( \frac{M_s^{30}}{d^{10}} + \frac{M_s^{10}}{d^{30}} \right) \cdot \left[ \frac{M_s^{30}}{d^{10}} \left\{ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{30} \right\} + \frac{M_s^{10}}{d^{30}} \left\{ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{10} \right\} \right] = 0 \quad (23)$$

ただし  $B^i = H - 4\pi D^i M_s^i$  である。(23)式を用いて共鳴モードを求めるが、ここで必要とされるパラメーターは 2 つの Fe 層の膜厚  $d^i$ 、磁化  $M_s^i$ 、有効反磁場  $4\pi D^i M_s^i$  である。 $\gamma$  の値は  $g$  値を 2.09 [15] として定数と見なした。(23)式において  $J = 0$ 、即ち 2 層間の相互作用が全く無い場合には、

$$\left( \omega / \gamma \right)^2 = H (H - 4\pi D^i M_s^i) \quad (24)$$

となり、これは Fe (i) 層における Kittel の式に他ならない。よって単層膜で得られた共鳴磁場から  $4\pi D^i M_s^i$  を求めればよいことになる。このように決められた  $4\pi D^i M_s^i$  を用いるならば、Fe (i) 層が自分自身の磁化によって感じる反磁場の影響はこの項の中に押し込まれてしまい、それとは独立なパラメーターとしての磁化  $M_s^i$  の値は層間の相互作用にのみ関係することになる。

相互作用が強い場合は  $J^2$  の項が強く効くようになり、このときは ( $J^2$  の係数) = 0 から共鳴磁場を求めることができる。この式を整理すると、

$$\left( \omega / \gamma \right)^2 = H [ H - \{ 4\pi D^{30} M_s^{30} \alpha + 4\pi D^{10} M_s^{10} (1 - \alpha) \} ] \quad (25)$$

ただし  $\alpha = d^{30} M_s^{30} / (d^{30} M_s^{30} + d^{10} M_s^{10})$  である。つまり (24) 式と比較してわかるように、この場合は 2 つの Fe 層の有効反磁場が加重平均された形で入っている。

2 つの Fe 層の磁気モーメントが一体となり、この加重平均された有効反磁場を感じて才



差運動をしているという描像である。

(23)式を導く場合、相互作用は境界条件の形で取り入れたが、実は次の形の運動方程式からでも全く同じ式が導かれる。

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\partial \mathbf{M}^i}{\partial t} = \mathbf{M}^i \times \left[ \mathbf{H}_{\text{eff}}^i + \frac{J}{d^i} \mathbf{M}^j \right], \quad (26)$$

ここで  $i=30, j=10$  または  $i=10, j=30$  である。  $\mathbf{H}_{\text{eff}}^i$  は(2)式のうち、第2、第5項を除き自由イオン差運動近似を行う。(26)式の方が直感的には分かりやすい形をしているが、実際のFe層間の相互作用は貴金属層の伝導電子を介して界面付近において行われるであろうから、やはり境界条件として取り入れたほうが物理的な描像としてはより正しいだろう。

(26)式においては、層間相互作用による  $\mathbf{M}^i$  の感じる  $\mathbf{M}^j$  からの磁場は、実際には界面でしか磁場  $J \mathbf{M}^j$  を感じないが、膜厚  $d^i$  で割ってFe(i)層全部が平均して  $J \mathbf{M}^j / d^i$  を感じているという描像になっている。

シグナル強度を計算するには、交流帯磁率  $\chi = \chi' - i\chi''$  の虚数項  $\chi''$  を求めればよい。すなわち、

$$\chi'' = -\text{Im} [ (\mathcal{M}_{x^{30}} + \mathcal{M}_{x^{10}}) / h ] \quad (27)$$

式(19)-(22)は  $\mathcal{M}_{x^{30}}, \mathcal{M}_{z^{30}}, \mathcal{M}_{x^{10}}, \mathcal{M}_{z^{10}}$  に関する4元一次方程式だから解くことができ、得られた  $\mathcal{M}_{x^{30}}, \mathcal{M}_{x^{10}}$  を式(27)に代入すればよい。計算の過程を書くとは冗長になるので、結果のみ示す。計算機のプログラムに使いやすいように何度も置き換えを行っており、しかもその置き換えが余り系統的ではないので多少分かりにくいものになっている。

$$\chi'' = \frac{\omega (S_r \cdot B_i - S_i \cdot B_r)}{(B_r)^2 + \omega^2 (B_i)^2}, \quad (28)$$

$$\text{ただし,} \quad S_r = (l)(\ddagger) + (n)(\dagger) + \omega^2 (u)(\wedge) + \omega^2 (\ddot{z})(f),$$

$$S_i = (u)(\ddagger) + (\ddot{z})(\dagger) - (l)(\wedge) - (f)(n),$$

$$B_r = B_{r1} - B_{r2} - B_{r3} \cdot B_{r4},$$

$$B_i = B_{i1} + B_{i2} + B_{i3},$$

$$\text{ただし,} \quad (l) = \beta M_s^{30} d^{30} - J M_s^{30} M_s^{10},$$

$$(u) = g^{30} M_s^{30} d^{30},$$

$$(n) = \gamma' M_s^{10} d^{10} - J M_s^{30} M_s^{10},$$

$$(\ddot{z}) = g^{10} M_s^{10} d^{10},$$

$$(\ddagger) = w - \alpha - \gamma' \delta + \omega^2 (g^{10})^2 - J M_s^{10} (\gamma' + \varepsilon) / d^{30},$$

$$(\wedge) = g^{10} (\gamma' + \delta) + J M_s^{10} (g^{30} + g^{10}) / d^{30},$$

$$(\dagger) = w - \alpha - \beta \varepsilon + \omega^2 (g^{30})^2 - J M_s^{30} (\beta + \delta) / d^{10},$$

$$(f) = g^{30} (\beta + \varepsilon) + J M_s^{30} (g^{30} + g^{10}) / d^{10},$$

$$B_{r1} = \alpha (\beta + \delta) (\gamma' + \varepsilon),$$

$$B_{r2} = \alpha \omega^2 (g^{30} + g^{10})^2,$$

$$B_{r3} = w - \alpha - \beta \varepsilon + \omega^2 (g^{30})^2,$$

$$B_{r4} = w - \alpha - \gamma' \delta + \omega^2 (g^{10})^2,$$



$$B_{11} = \alpha (g^{30} + g^{10}) (\beta + \gamma' + \delta + \varepsilon) ,$$

$$B_{12} = [w - \alpha - \beta \varepsilon + \omega^2 (g^{30})^2] g^{10} (\gamma' + \delta) ,$$

$$B_{13} = [w - \alpha - \gamma' \delta + \omega^2 (g^{10})^2] g^{30} (\beta + \varepsilon) ,$$

ただし,

$$\alpha = J^2 M_s^{30} M_s^{10} / (d^{30} d^{10}) ,$$

$$\beta = H - 4\pi D^{30} M_s^{30} + J M_s^{10} / d^{30} ,$$

$$\gamma' = H - 4\pi D^{10} M_s^{10} + J M_s^{30} / d^{10} ,$$

$$\delta = H + J M_s^{30} / d^{10} ,$$

$$\varepsilon = H + J M_s^{10} / d^{30} ,$$

$$g^{30} = G^{30} / (\gamma^2 M_s^{30}) ,$$

$$g^{10} = G^{10} / (\gamma^2 M_s^{10}) ,$$

$$w = (\omega / \gamma)^2 .$$

式(27)によって  $\chi''$  を計算するには, 式(23)で共鳴磁場を求めるときに必要であったパラメーター:  $d^i$ ,  $M_s^i$ ,  $4\pi D^i M_s^i$  の値の他に, ギルバート減衰係数  $G^i$  の値が必要となる.

## 4. 2 解析結果

4. 1 節で導入したモデル (以下 2 スピンモデルと呼ぶ) の妥当性を検討するために式(27)によって交流帯磁率の虚数項  $\chi''$  を外部磁場の関数として数値計算する. 計算に用いるパラメーターは, 代表として Fe/Au/Fe 系の挙動を最もよく再現する値を用いることにする.

$$\text{パラメータ: } d^{10} = 10 \text{ \AA}, \quad d^{30} = 30 \text{ \AA}$$

$$M_s^{10} = 800 \text{ Gauss}, \quad M_s^{30} = 1700 \text{ Gauss}$$

$$4\pi D^{10} M_s^{10} = -7.37 \text{ kOe}, \quad 4\pi D^{30} M_s^{30} = -14.27 \text{ kOe}$$

$$G^{10} = 0.2 \times 10^9 \text{ Hz}, \quad G^{30} = 0.4 \times 10^9 \text{ Hz}$$

図 12 に結合パラメーター  $J$  を  $-1 \sim 6 \times 10^{-8} \text{ cm}$  まで  $1 \times 10^{-8} \text{ cm}$  毎に変えた微分吸収スペクトルの計算結果を示す. 吸収スペクトル強度を微分吸収スペクトルに直すために, 式(27)によって 1 Oe 毎に  $\chi''$  を求め, 1 Oe 毎の  $\chi''$  の変化 (1 Oe の差分) を微分値と見なしている. 吸収スペクトル自体がゆるやかな変化をしているので, 1 Oe 程度であれば磁場の間隔の取り方に微分吸収スペクトルの形はほとんど依存しない.

Cu, Ag, Au 3 つの系の典型的なスペクトルを示した図 10 (a) - (c) において見られた, 上下 2 つのシグナルの位置及び強度比の変化が計算によって再現されているのがわかる. 結合パラメーター  $J$  の値が大きくなるにつれ, 高磁場側のシグナルは強度が増大し, 共鳴磁場が一定値に近づく. また低磁場側のシグナルは強度が減少して 0 磁場へシフトしていく様子が読み取れる. 注目すべきは,  $J = -1 \times 10^{-8} \text{ cm}$  の計算結果



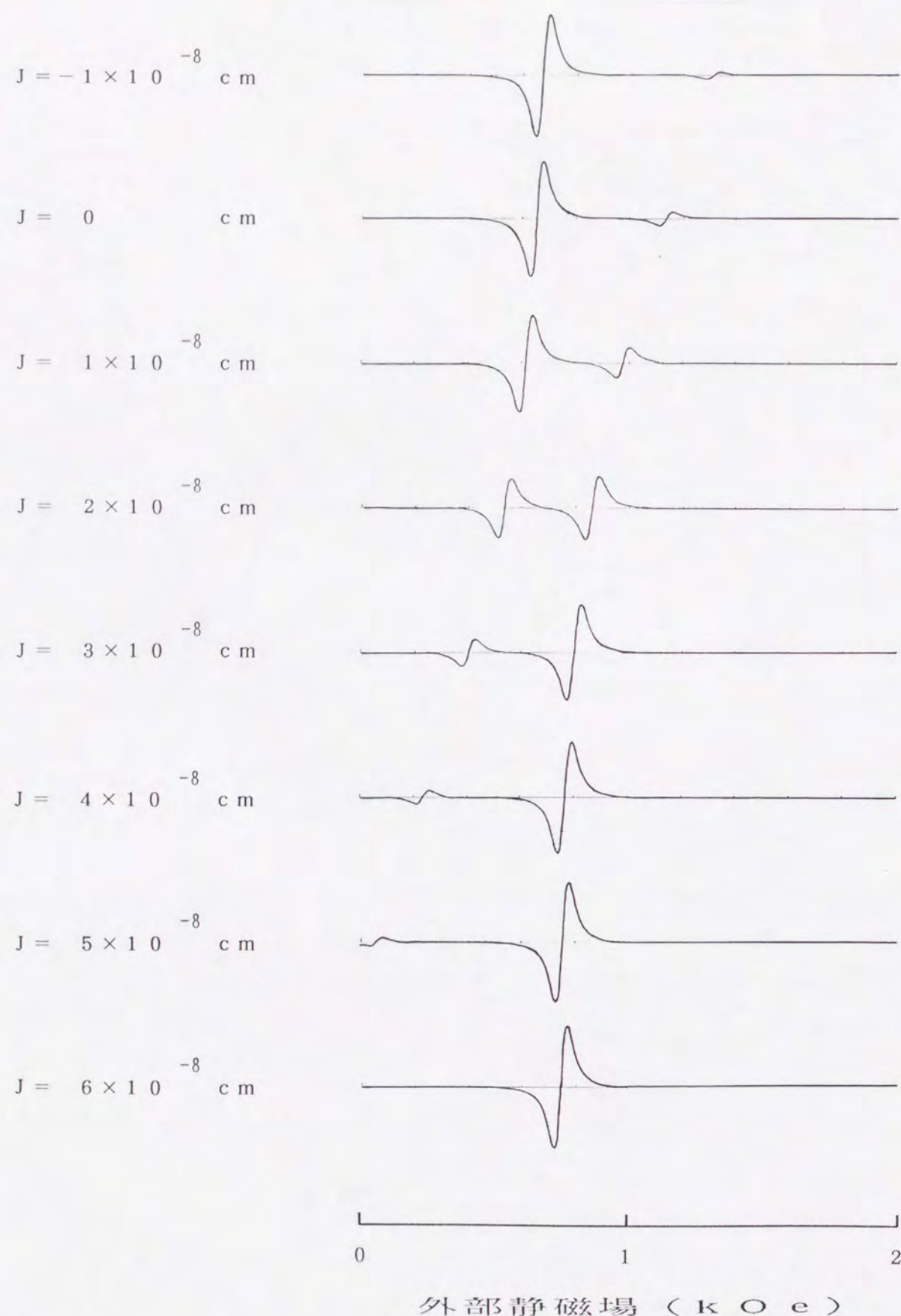


図 1 2 2 スピンモデルに基づく交流帯磁率から計算した微分吸収スペクトル

であり，F e 層間に反強磁性的相互作用 ( $J < 0$ ) があると，特に高磁場側のシグナルが  $J = 0$  の場合より高磁場に現れ，かつ強度が弱くなっていることがわかる．これは強磁性共鳴によって F e 層間の反強磁性的結合を調べるときの重要なポイントとなる．図 1 0 (c) で見られた F e / A u / F e 三層膜の  $d_{Au} = 80 \text{ \AA}$  の試料において，高磁場側のシグナルの強度が非常に弱いのは，この  $J < 0$  の場合に相当していると考えれば説明がつく．

式(27)によって計算した微分吸収スペクトルと実験で得られた微分スペクトルを対比させて議論を進めてもよいが，実験で得られた結果のうち最も信頼できるのは共鳴磁場の値であるため以下ではおもに共鳴磁場に絞って議論を進めたい．共鳴磁場以外の点に関しては「(7) 計算では全てのシグナルが共鳴値の左右で対称な形をしているのに対して，実験で得られたシグナルは明らかに対称ではない」，「(i) 0 磁場へシフトしていく低磁場側のシグナルが，計算ではある程度の強度を保っているのに対して，実験では大変に弱い．」等の違いがみられる．(7) に関しては，伝導電子の影響が考えられ，(i) に関しては，図 5 (a)，(b) に示した V S M による磁化測定からわかるように，低磁場では磁気モーメントが完全には外部磁場の方向を向いていないためであると考えられる．もっと周波数の高いマイクロ波を用いて E S R を測れば，共鳴磁場がより高磁場に現れるためにこの磁化の飽和の問題は解決できるはずである．

式(27)によって求めた  $\chi''$  の極大値と自由イオン差運動近似をした式(23)によって求めた共鳴磁場とは，ギルバート減衰係数  $G^i$  が  $10^8 \text{ Hz}$  程度以下であれば，1 O e 以内で一致することが予備的な計算からわかっている．従って以下では式(23)により求めた共鳴磁場値を用いることにする．



図13に結合パラメーター $J$ と共鳴磁場との関係を示す。計算に用いたパラメータ値は、代表としてFe/Au/Fe系の場合を最もよく再現する値を用いた。従って図12の計算で用いた値と同じであるが、今の場合は式(23)を用いているためにギルバート減衰係数 $G^i$ の値は必要としない。Fe(10Å)層の磁化の値 $Ms^{10}$ に関しては、SQUIDの測定結果1700 Gaussの約半分の値を採用しているが、これは実験結果を再現するために必要な処置であり、詳しくは「§5 議論」で述べる。

図13の中に示した「音響モード」と「光学モード」の意味を述べる。この呼び方はHeinrichら[14, 15]の論文においてされており、それぞれ2つのFe層の磁気モーメントが“in-phase”, “out-of-phase”に才差運動しているモードであることから名付けられた。トルクには磁気モーメントに直交した磁場の成分しか効かないので、2つの磁気モーメントが位相を揃えて才差運動していれば層間の交換相互作用の影響はなくなる。これが図中左及び右の音響モードである。右の音響モードの行き着く先、すなわち $J \rightarrow \infty$ での共鳴磁場は式(25)から求められる。この場合2つのFe層の磁気モーメントは完全に平行で一体となり、2つのFe層の有効反磁場を加重平均した有効反磁場を感じて、一体となった磁気モーメントが才差運動していることになる。一方、位相が $180^\circ$ 違って2つの磁気モーメントが才差運動していると、交換相互作用にもとづく $J$ に比例した磁場が相手の磁気モーメントに対して直交した成分をもつことになる。このため $J > 0$ では、 $J$ が大きくなるにつれ共鳴に必要な外部磁場の大きさが $J$ に比例して小さくなり、ついには0になる。また $J < 0$ では、同じ理由によって共鳴に必要な外部磁場の大きさが $J$ に比例して増加することになる。これらがそれぞれ図中右下と

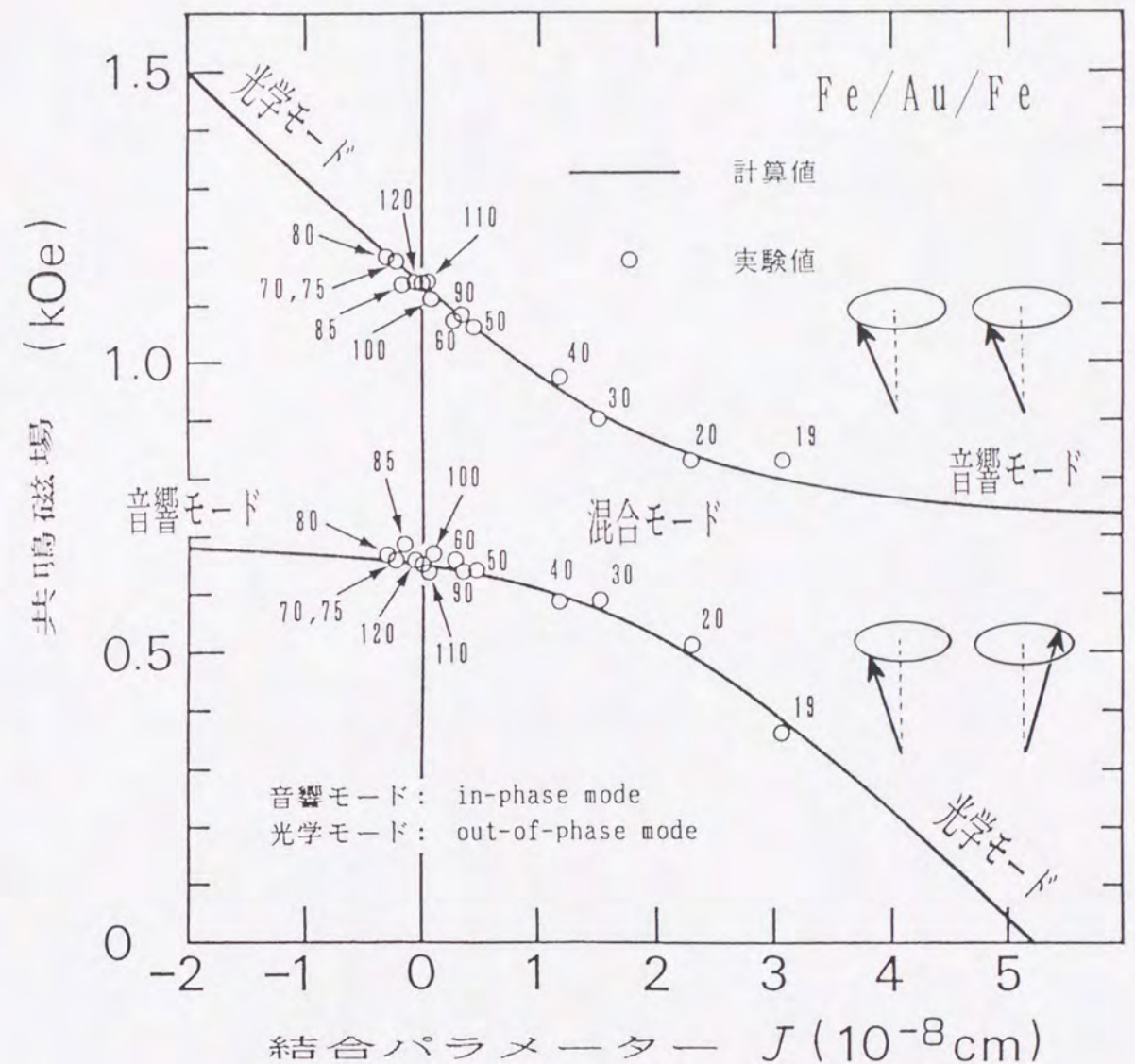


図13 2スピンモデルによって得られた結合パラメーター $J$ と共鳴磁場の関係及び実験値に基づく $J$ の評価 (Fe/Au/Fe系)



左上の光学モードに対応する。光学モードでは位相が  $180^\circ$  違って才差運動を行っていることから、図12の  $\chi''$  の計算結果からもわかるように、マイクロ波の吸収強度は弱くなる。

各試料に対して Fe 層間の結合パラメーターを決めるには、実験で得られた共鳴磁場を計算値と比較して決めることになる。実験で得られた上下2つの共鳴磁場が計算値と完全に一致することはまず無いので、上側及び下側の計算値と実験値の差の2乗の和が最小となる  $J$  を各試料の  $J$  の値とした。言い替えるならば、上下二つの共鳴磁場の組に対して、それを最もよく再現する  $J$  の値を求めたことになる。この場合  $J$  はフィッティングパラメーターとなる。このようにして  $J$  を決める様子も、Fe/Au/Fe系について、図13に示してある。右側の音響モードの共鳴磁場は緩やかに減少するため、実験で単一のシグナルしか得られなかった試料については、その  $J$  値を決めるのが困難である。従って図には2つのシグナルが得られた試料、つまり層間の強磁性的結合があまり強くない試料に関してのみ示してある。

上で述べた Fe/Au/Fe系と同様に、Fe/Cu/Fe系、Fe/Ag/Fe系に関して式(23)による計算値と実験値との比較から  $J$  を評価する様子をそれぞれ図14及び図15に示す。これらの図中に用いた  $J'$  は、Fe層の内側の界面に単位面積当り、

$$E_{ex} = -J' \frac{M^{10}}{|M^{10}|} \cdot \frac{M^{30}}{|M^{30}|} \quad (29)$$

のエネルギーがあるとした場合の結合パラメーターであり、先に用いた  $J$ 、すなわち界面

エネルギーの表現、

$$E_{ex} = -J M^{10} \cdot M^{30}, \quad (30)$$

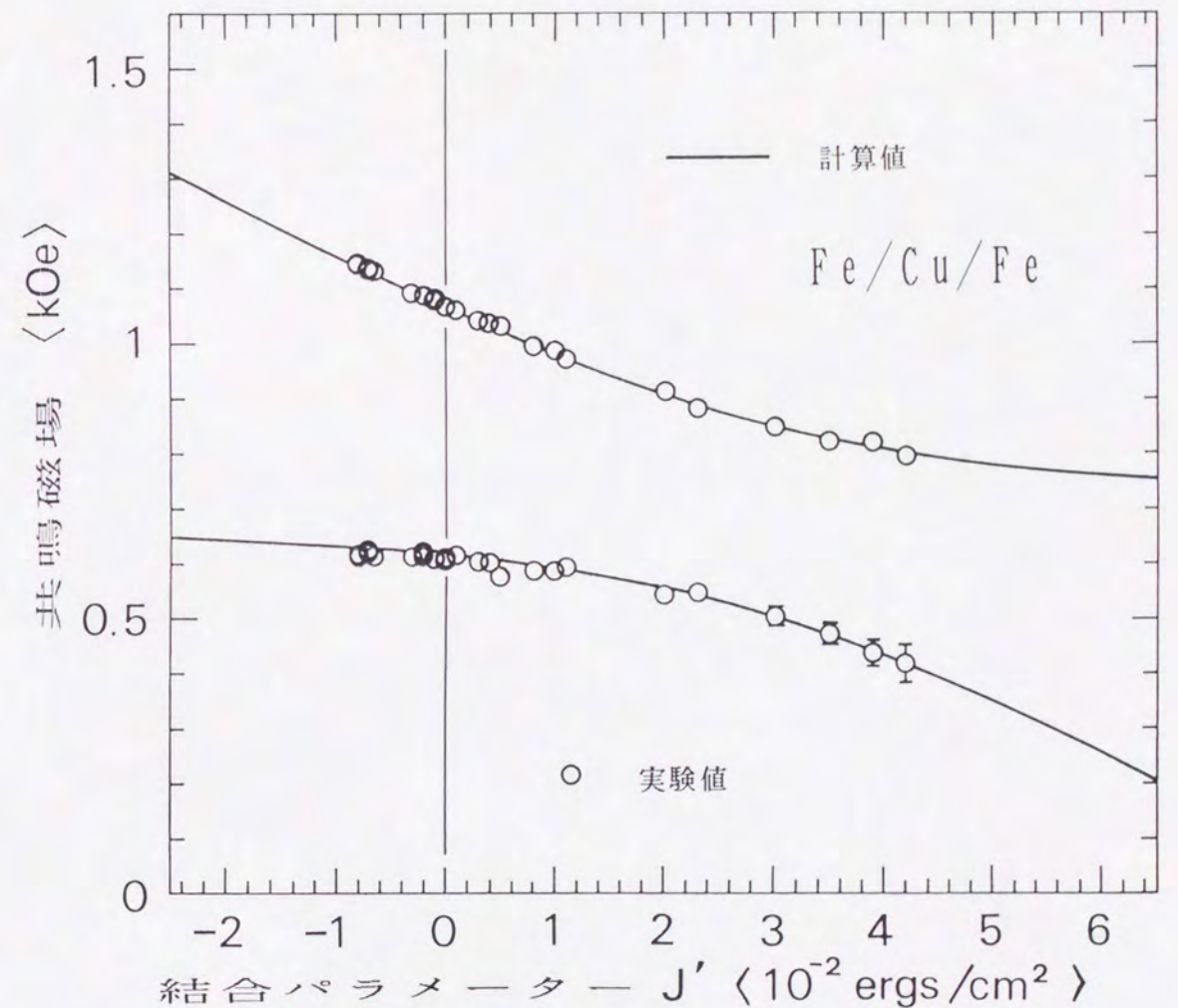


図14 2スピンモデルによって得られた結合パラメーター  $J'$  と共鳴磁場の関係及び実験値に基づく  $J'$  の評価 (Fe/Cu/Fe系)



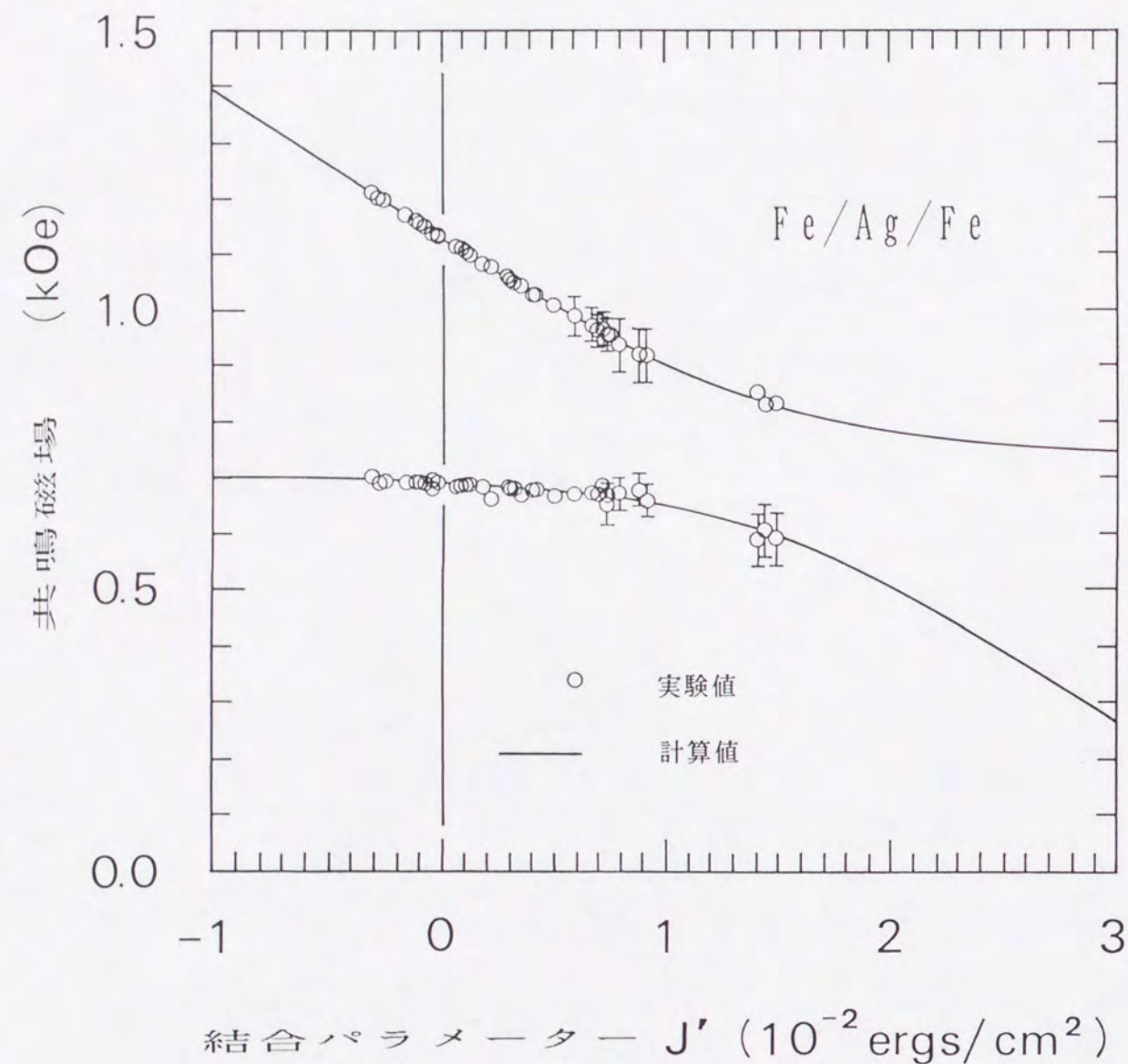


図 1.5 2 スピンモデルによって得られた  
結合パラメーター  $J'$  と共鳴磁場の関係  
及び実験値に基づく  $J'$  の評価  
(Fe/Ag/Fe 系)

に於ける結合パラメーター  $J$  とは,

$$J' = J |M^{10}| |M^{30}| \quad (31)$$

なる関係が成立する。磁性層間の結合の強さを表すのに、数年前までは  $J$  を用いる研究者が多かったが、最近ではむしろ  $J'$  の方が使われる頻度が高いようである。これはこの分野で最も活躍している Heinrich らのグループの論文に於て  $J'$  が用いられているためであると思われる。もっとも彼らも初期の論文 [14] に於いては  $J$  の表現を用いていた。どちらがより物理的な意味があるかは磁性層間の相互作用の機構に関係しており、即断は出来ないが、 $J'$  の表現では磁性層の磁化の大きさが絡んでくるために、§5 で述べるように Fe 層の磁化もフィッティングパラメーターとして考える場合には、むしろ  $J$  による表現の方がふさわしいのではないかと考えられる。

表 4 には、計算に用いたパラメーター値を Fe/Au/Fe 系の場合も含めてまとめて示してある。マイクロ波の周波数は空洞周波数計によって実測した値であり、Fe 層の膜厚  $d^i$  は蒸着中に膜厚計によって測定した値を用いた。有効反磁場  $\Delta^i (= 4\pi D^i M_s^i)$  は、表 3 に示した Fe 単層膜試料の共鳴磁場値から式 (24) によって求めたものである。Fe/Cu/Fe 系、Fe/Ag/Fe 系の場合にも、やはり Fe/Au/Fe 系の場合と同じように、Fe (10Å) 層の磁化の値を SQUID による測定値とは違った値にする必要があった。

磁化の値の解釈の問題があるが、2 スピンモデルに基づく計算は、実験で得られた上下 2 つのシグナルの共鳴磁場の位置相関を極めてよく再現しているのが、図 1.3 だけでな



	マイクロ波 周波数 [GHz]	Fe層厚[Å]		有効反磁場 [kOe]		磁化 [Gauss]	
		d <sup>10</sup>	d <sup>30</sup>	Δ <sup>10</sup>	Δ <sup>30</sup>	M <sub>s</sub> <sup>10</sup>	M <sub>s</sub> <sup>30</sup>
Fe / Cu / Fe	9.105	10	30	-8.04	-15.15	1100	1700
Fe / Ag / Fe	9.125	10	30	-7.48	-13.52	400	1700
Fe / Au / Fe	9.105	10	30	-7.37	-14.27	800	1700

※ g 値は3つの系に共通に2.09 [参考文献15]を採用した

表4 図13-15の理論曲線の  
計算に用いたパラメーター

く図14及び図15からもよくわかる。3つの系について、図13, 14, 15において計算値と比較して決定した結合パラメーターJまたはJ'の貴金属層厚dへの依存性を図16, 17, 18に示す。

3つの系に共通して言えることは、貴金属層厚が15~20 Åを越えるとFe層間の強磁性的相互作用が急激に弱くなることである。それ以下の膜厚では、シグナルが単一のものしか現れないために、結合パラメーターの定量的な評価は困難である。しかし、図16-18に表示されている $10^{-2}$  ergs/cmまたは $10^{-8}$  cmという結合パラメーターのオーダーは、磁性体が直接的に接している場合の結合パラメーター[14]と比較しておよそ4ケタも小さいものであるから、貴金属層が0から20 Å程度まで厚くなるにしたがってFe層間の相互作用の大きさは4ケタも減衰していることになる。細かな点を除けば、3つの系において結合パラメーターの大きさは指数関数的な減衰を示しているといえる。パーマロイ/Cu/パーマロイ試料[18]等多くの試料においても、結合パラメーターの指数関数的減衰が報告されている。

各々の系について個別に見てみる。まずFe/Cu/Fe系(図16)に関しては、d~18 Åでの急激なJ'の減衰の後に、d=20 Å前後でのJ'の1 Å毎の特異な変動がみられる。これは共鳴磁場の変化で見た方が分かりやすい。図11(a)の下図では、d=16-22 Åで1 Å毎の共鳴磁場の振動がみられる。これは上下2つのシグナルに共に起こっていることであり、下側のシグナルではエラーバーが幾分大きい、上側のシグナルではエラーバーは○印以下であり、この変動は十分に信頼できる。特に奇妙なのは、d=17, 19, 21では、その前後のdでの共鳴磁場値と連続的に変化しているの



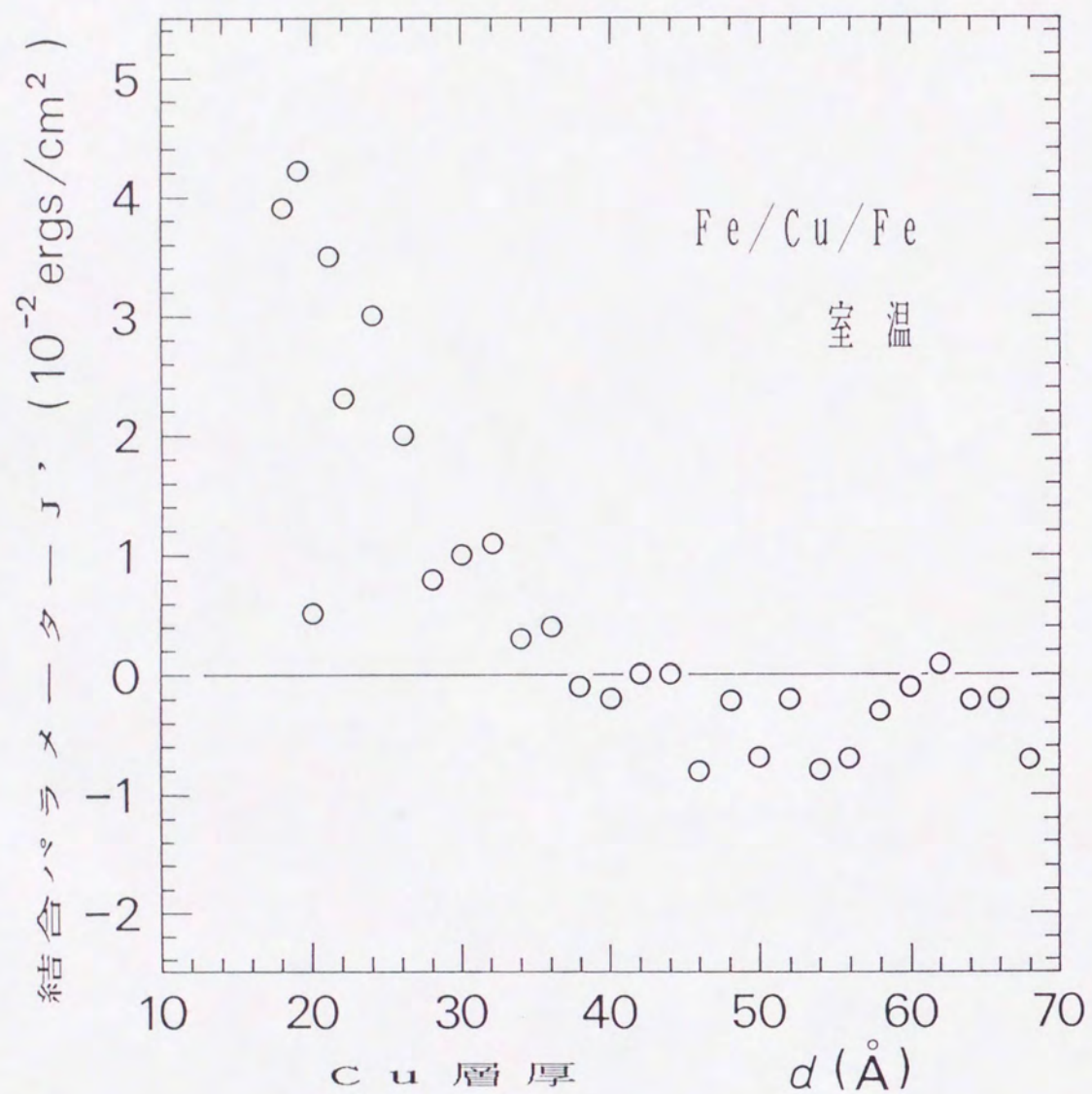


図16 Fe/Cu/Fe系における  
Fe層間結合パラメーター $J'$ の  
Cu層厚への依存性

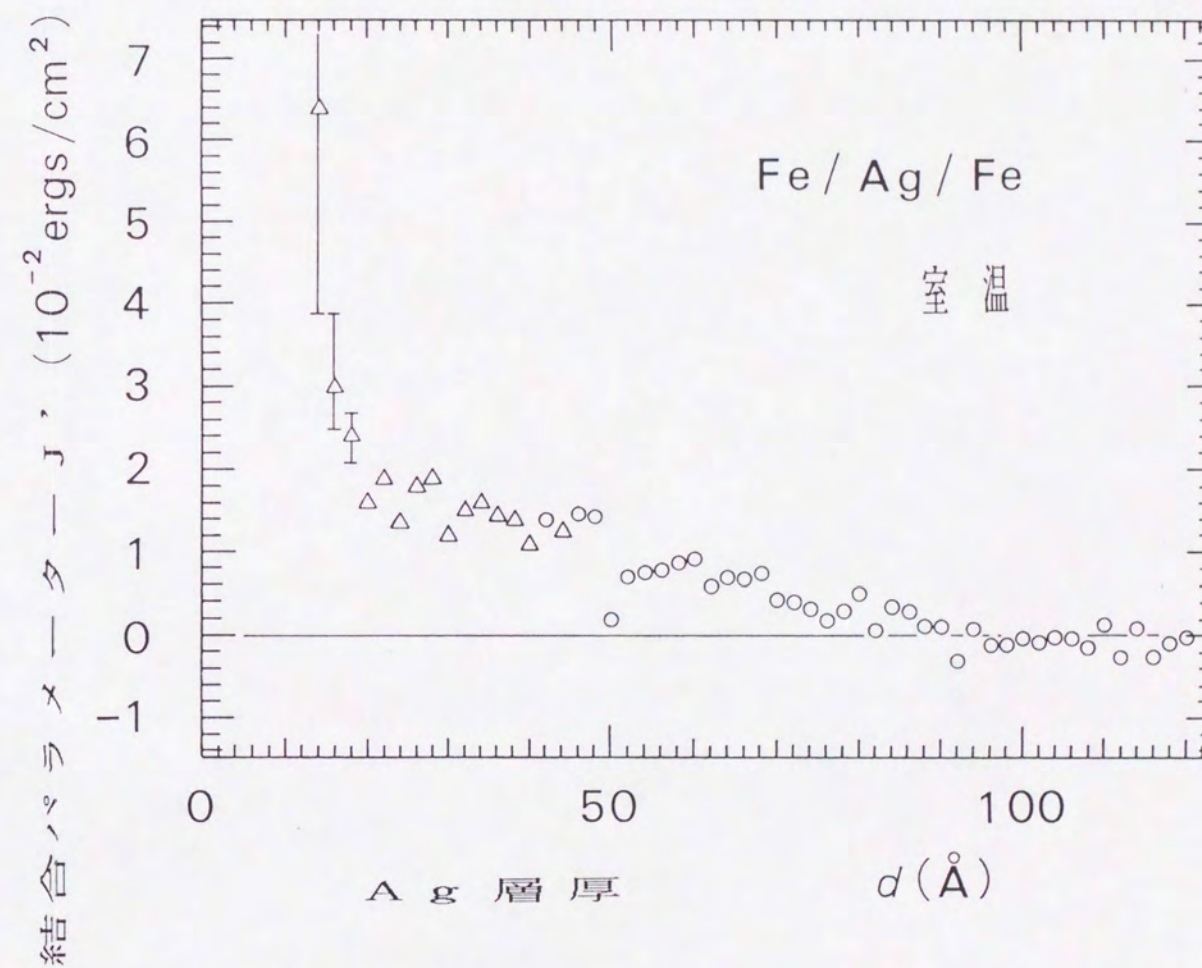


図17 Fe/Ag/Fe系における  
Fe層間結合パラメーター $J'$ の  
Ag層厚への依存性



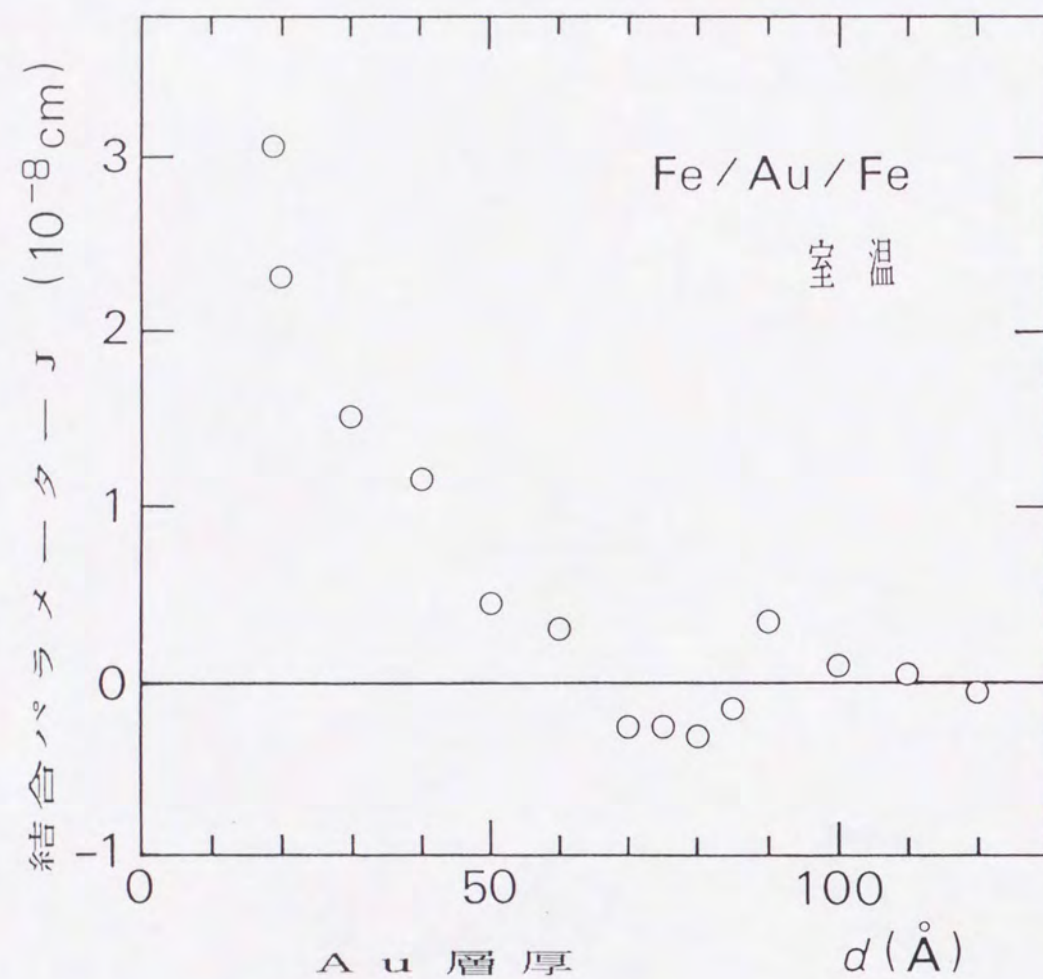


図 1 8 Fe / A u / F e 系における  
F e 層間結合パラメーター J の  
A u 層厚への依存性

に対して、 $d = 18, 20, 22$  のデータは  $d = 17, 19, 21$  の共鳴磁場を含むベースラインから急に飛び上がっているように見えることである。これは図 1 6 においては、 $d = 18, 20, 22$  特に  $d = 22$  での結合パラメーターの特異的な落込みによって表されている。Cu 層厚のこの領域では、分子ビームエピタキシー法によって作製された単結晶に近い Fe / Cu / Fe 試料において強い反強磁性的結合が見いだされており [19]、結晶性が幾分劣る我々の試料では、ピンホール等の直接的接触による強磁性的相互作用が間接的な反強磁性的相互作用に打ち勝っているため、強磁性的結合を示すのではないかと考えられる。Cu 層の膜厚がさらに大きい領域に目を移してみると、 $40 \text{ Å}$  以上で弱い反強磁性的結合がみられ、同時に  $42 - 56 \text{ Å}$  間で  $2 \text{ Å}$  程度の振動も読み取ることが出来る。 $20 \text{ Å}$  前後での  $J'$  の振動と考え併せてみると、 $1 \sim 2 \text{ Å}$  程度の短周期の  $J'$  の振動は、Fe 層間が反強磁性的結合をする領域で現れるのではないかという推測も成り立つ。

次に Fe / A g / F e 系 (図 1 7) に関してまず注意しておきたいのは、図中に  $\triangle$  印で表したデータは、単一シグナルのデータから決められた結合パラメーターの値であるということである。この系の場合には、図 1 1 (b) からわかるように Ag 層厚がおよそ  $40 \text{ Å}$  以下では単一のシグナルしか現れない。従って Fe / C u / F e 系や Fe / A u / F e 系のように、2 つのシグナルが得られた試料についてのみ結合パラメーターをプロットしては  $40 \text{ Å}$  以下のデータ点がなくなってしまうことになる。そこで共鳴磁場値の誤差を  $\pm 200 \text{ Oe}$  と見積り、エラーバーを評価して表示した。音響モードの共鳴磁場は結合パラメーターに対してゆっくりとしか変化しないために、特に結合パラメーター



の値の大きいデータ点ではエラーバーが大きくなっている。全体としては、100

Å程度まで弱い強磁性的な結合が続き、106–120 Åで2 Å毎の振動が反強磁性的結合も含めて見られる。同じ様な短周期振動は18–34 Åでも見られ、どちらの領域においても、その領域内で結合パラメーターの大きさが15 Å程度の長周期変動をしているように見える。これが最近提唱されている「フェルミ面効果+RKKY相互作用」に基づく磁性層間相互作用[20]によるものかどうかは即断は出来ないが、実験的事実として報告する価値は十分にあると思われる。ただ惜しまれるのは、もっとAg層厚の大きい試料を作製して、もっと広いdの範囲でこの現象が現れるかどうか観測できなかったことである。

Fe/Au/Fe系に関しては作製したAu層厚の間隔が他の系に比べて大きいので、結合パラメーターの細かな変動については議論できないが、Fe/Cu/Fe系、Fe/Ag/Fe系に比べて明確な反強磁性的結合がみられた点は興味深い。他の2つの系では共鳴磁場位置の観点からのみ反強磁性的結合が結論されたが、このFe/Au/Fe系では、 $d = 80 \text{ Å}$ で高磁場側のシグナルの強度が明瞭に落ちていることから反強磁性的結合が結論できる。たとえ $J < 0$ であっても、ある程度Jが絶対値として大きくないと真の光学モードにならず、高磁場側のシグナルの強度が落ちないためであろうと考えられる。なおAu層を介したFe層間の反強磁性的結合は、この研究において初めて観測され[21]、のちにCelinskiら[19]も分子ビームエピタキシー法によって作製した試料において見いだしている。

図19に3つの系について結合パラメーターを $J'$ に統一して、その貴金属層厚への

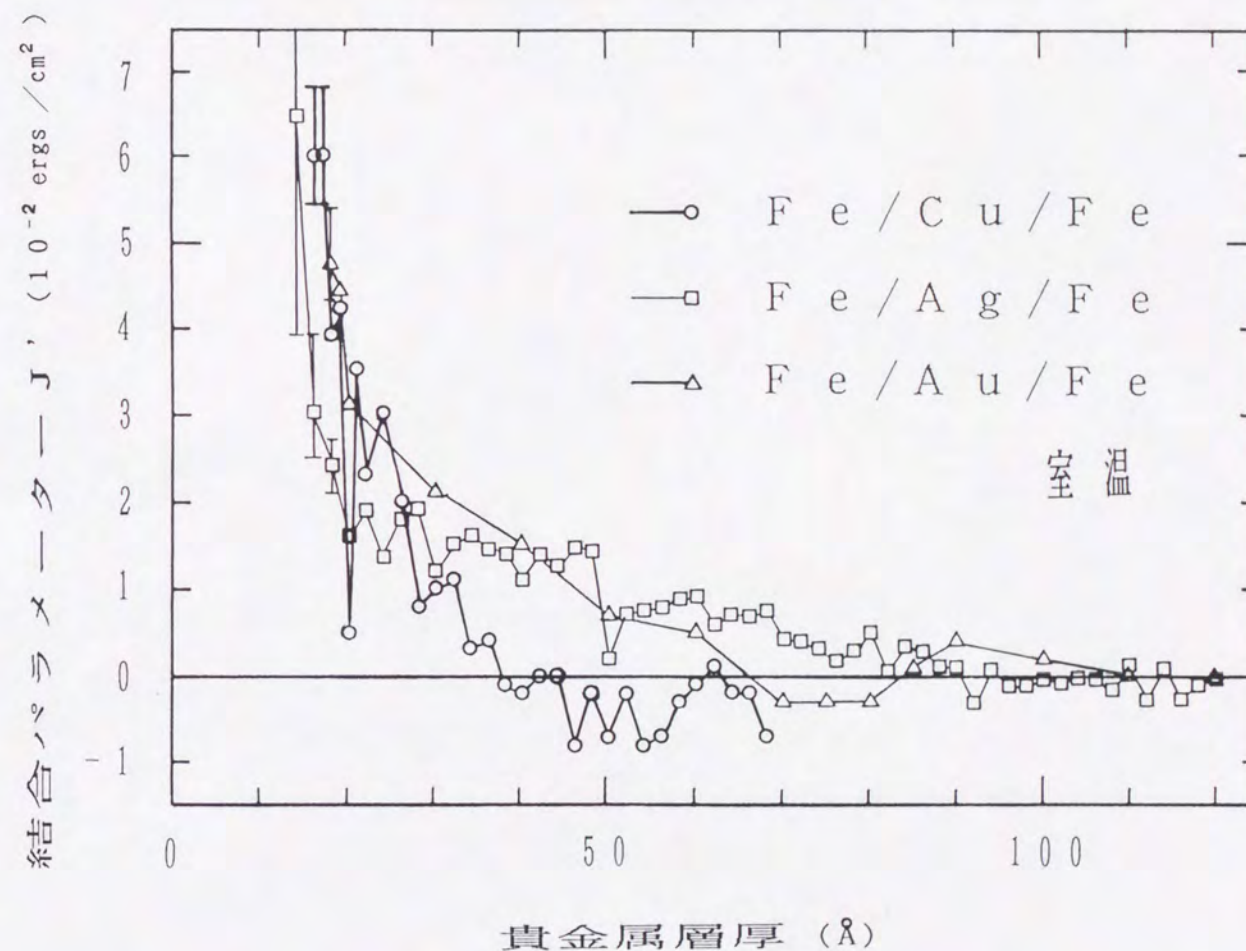


図19 Fe層間の貴金属層の違いによる結合パラメーター $J'$ の貴金属層厚 $d$ への依存性の違い



依存性を示した。当初の目的であった、元素の違いによる層間結合の違いから層間相互作用の機構に迫ることは、幾分難しいようである。図19において3つの元素による系統的な違いは余りはっきりしない。おそらく原子半径の違いによって、同じAuバッファ層上に作製しても、構造や界面の端正さが系によって違ってくるためであろうと考えられる。しかしながら3つの系すべてにおいて、実験結果が単純な2スピンモデルで十分に説明され得ることがわかったことは著しい成果である。この解析の結果は、各Fe層内での磁気モーメントが単一磁気モーメントと見なせるほど各Fe層は磁気的には均一であるうえに、Fe層間の相互作用が交換相互作用の形で表せることを直接的に証明している。

## § 5 議 論

前節では2スピンモデルを導入し、Fe層間相互作用として交換相互作用を仮定することによって実験結果を再現することが出来た。それでは磁性層間の相互作用は本当に交換型の相互作用だけであるかという点、最近Fußら[22]がFe/Au/FeとFe/Al/Fe系において、SMOKEによってM(H)カーブを測定し、その実験結果を解析するためには $(\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2)^2$ に比例する項が必要であることを報告している。もしこの報告の通りに磁性層間の相互作用に"biquadratic"項が存在するとすれば、相互作用による界面エネルギーは、

$$E_{ex} = -A \frac{\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2}{|\mathbf{M}_1| |\mathbf{M}_2|} - B \left( \frac{\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2}{|\mathbf{M}_1| |\mathbf{M}_2|} \right)^2, \quad (32)$$

の形で書けるはずである。この"biquadratic"項の強磁性共鳴における影響を以下に評価する。まず磁気モーメント $\mathbf{M}_1$ と $\mathbf{M}_2$ のなす角度を $\alpha$ とすると、

$$E_{ex} = -A \cos \alpha - B \cos^2 \alpha. \quad (33)$$

これを $\cos \alpha$ で変分すると、

$$\delta E_{ex} = (-A - 2B \cos \alpha) \delta \cos \alpha. \quad (34)$$

共鳴を起こしているときには、 $\mathbf{M}_1$ と $\mathbf{M}_2$ は外部磁場の方向を向き、微小振動をしていると



考えられるから  $\alpha \rightarrow 0$  として,

$$\delta E_{ex} = (-A - 2B) \delta \cos \alpha. \quad (35)$$

従ってもし "biquadratic" 項があったとしても, 強磁性共鳴の場合には層間相互作用を通常の交換相互作用と見なしても差し仕えがないことになる. この場合には, 各係数の間には,

$$J' = A + 2B \quad (36)$$

という関係が成立している. ただし磁性層間の反強磁性的相互作用が強く, 2つの磁気モーメントがある角度をなして共鳴を起こす場合には, 当然この "biquadratic" 項の影響による交換型の相互作用からのずれが明確になるはずである. 我々の試料の場合にはあまり強い反強磁性的相互作用は見いだされていないので, このおそれはないと言えよう.

次に, 前節でも問題になった結合パラメーターの関数としての共鳴磁場を計算するにあたって, 磁化  $M_s^{10}$  の値を S Q U I D による測定値とは著しく異なったものにしないと実験結果が再現できないことについて, その根拠と解釈を述べる.

表5に S Q U I D による測定値と解析に用いた値の対比を示す. 3つの系の中で実測値と計算に用いた値とが最も食い違っているのは, F e / A g / F e 系である. この系において  $M_s^{10} = 400 \text{ Gauss}$  の値を用いて計算した結果は, 既に図15に示してあるように実験で得られた上下2つの共鳴磁場の相関を極めてよく再現している. 値を S Q U I D の実測値に近い  $M_s^{10} = 1700 \text{ Gauss}$  にした場合の計算結果を図20に示すが, この場合には実験で得られた上下2つの共鳴磁場の相関がうまく再現されていない. 無理に上側

	S Q U I D による実測値			解析に用いた値		
	磁化[Gauss]		総磁化比	磁化[Gauss]		総磁化比
	$M_s^{10}$	$M_s^{30}$	R	$M_s^{10}$	$M_s^{30}$	R
F e / C u / F e	1530	1700	3.33	1100	1700	4.64
F e / A g / F e	1670	1700	3.05	400	1700	12.75
F e / A u / F e	1700	1700	3.00	800	1700	6.38

※ 総磁化比  $R = d^{30} M_s^{30} / d^{10} M_s^{10}$

表5 F e 層の磁化及び総磁化比の S Q U I D による実測値及び解析に用いた値の対比



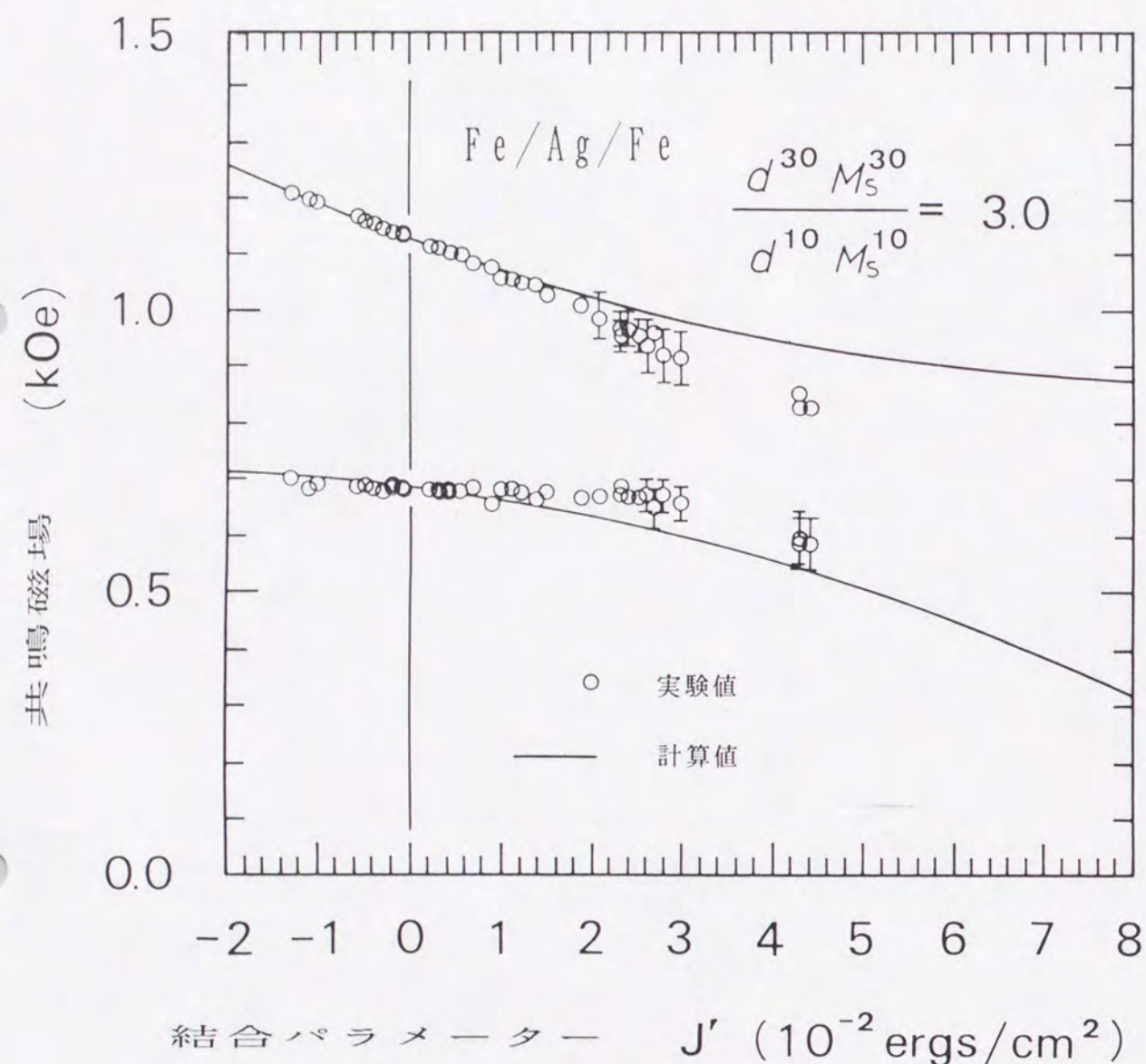


図 20 磁化として S Q U I D による実測値を用い 2 スピンモデルによって得られた結合パラメーター  $J'$  と共鳴磁場の関係

及び下側の計算値と実験値の差の 2 乗の和を最小とする位置に実験で得られた共鳴磁場値を示してあるが、 $J' > 0$  だけでなく  $J' < 0$  においても、全体として系統的にずれているのがわかる。なおこの図 20 に基づいて各試料の  $J'$  値を評価しても、 $M_s^{10} = 400$  Gauss とした計算結果の図 15 から求めた図 17 の各膜厚に対する  $J'$  の値と比べて、符号（強磁性的か反強磁性的か）及び大小関係は変わらないという事実を付け加えておきたい。この系統的なずれを解消するために、Fe 層厚  $d^i$ 、Fe 層の磁化  $M_s^i$ 、有効反磁場  $\Delta^i (= 4 \pi D^i M_s^i)$  もパラメーターと見なして振ってみた結果、最もよく実験結果を再現するのが  $M_s^{10}$  を実測値より小さくした場合であった。 $M_s^{30}$  を大きくしても同じ効果が得られたが、バルク値よりも大きい値を取るというのは考え難いので、 $M_s^{30} = 1700$  Gauss として、 $M_s^{10}$  を減少させたわけである。

2 スピンモデルによって計算した結果と実験値が系統的にずれているという報告は、他の研究者によっても行われている。この研究と同じ真空蒸着法によってガラス及びマイカ上に作製した Co/Pt/Co 三層膜（Bloemenら [23]）だけでなく、分子ビームエピタキシー法によって作製された単結晶に近い試料（Heinrichら [24, 25]）においても報告されている。従って、この実験値と理論値とのずれは試料の質が悪いせいではなく、やはり何か本質的なものを含んでいると考えないわけにはいかない。Bloemenらや Heinrichらはこの系統的なずれを、磁性層間の非磁性層の厚さが変わっていくにしたがって磁性層の構造や磁性層と非磁性層の間の界面のストレス等が変わることによって各磁性層の磁気異方性が変化するためであろうと説明している。§4 で用いた言葉で言い替えるならば、非磁性層の厚さ  $d$  が変わるにしたがって各 Fe 層の有効反磁場  $\Delta^i$  が



変化していることになる。我々の用いている $\Delta^i$ には、Fe層自身の磁化による反磁場効果だけでなく、磁気異方性の影響も含まれているからである。我々の解析では、 $\Delta^i$ は各系のFe層に固有で貴金属層厚 $d$ が変化しても一定値を取り、共鳴磁場の変化はFe層間の相互作用の変化のみによるものとしてきた。しかし貴金属層厚 $d$ が変化するにつれて貴金属層の最上面の乱れが変化し、結果としてその上に乗ったFe層の磁気異方性が影響を受けることがあるかも知れない。この説明が正しいか否かを確かめるためには、同じ系に属する各試料についてその2つのFe層の磁気異方性が変化しているか否かを調べればよい。しかしそのままの三層膜の状態では、どのような実験を行ってもFe層間の相互作用の影響が除去できないために、Fe層自身の磁気異方性が変化しているのを調べるのは困難であると思われる。もし可能ならば、三層膜を途中から剥して2つのFe層を別々にして測定するのが一番良いが、これは現在のところ全く不可能である。

以上で述べた有効反磁場 $\Delta^i$ が一つの系において必ずしも一定ではないという説は完全には否定できないが、実験的に検証されているものでもない。そこで我々が§4で取り扱った $M_s^{10}$ もフィッティングパラメーターとして扱う解析の正当性について考えてみる。Fe(10Å)層の磁化(後で述べるが正確には総磁化比 $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ )を変えることによって実験結果を再現することにはいくつかの根拠がある。

まず第一に、3つの系すべてにおいて磁化 $M_s^{10}$ (あるいは総磁化比 $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ )を変えるだけで実験結果を見事に説明し得るという点である。先に述べた $\Delta^i$ を各試料毎(各膜厚毎)に変える方法では、共鳴磁場の位置を各試料(各膜厚)に対して任意にずらすことが出来ることになる。ところが我々の扱った方法では、一つの系に共通

に磁化 $M_s^{10}$ (あるいは総磁化比 $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ )を与えてやればよいのである。

パラメーターを一つ増やしただけで実験結果を十分に再現できるのであるから、この操作に何か物理的な意味があると考えの方が自然ではないだろうか。

第二の根拠として、貴金属層が薄くなる時に単一のシグナルの共鳴磁場の行き着く先が、磁化 $M_s^{10}$ (あるいは総磁化比 $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ )をSQUIDによる実測値にすると説明できないことである。§4で示したように、 $J$ が十分に大きくなると式(23)の中の $J^2$ の項がおもに効くようになり、式(25)によってそのときの共鳴磁場が計算できる。表6に、測定した中では最も貴金属層が薄く強磁性的結合が最も強いと考えられる $d = 10 \text{ \AA}$ の試料の共鳴磁場、磁化の値をSQUIDによる実測値として式(25)によって計算した共鳴磁場、2つのシグナルが観測された試料の共鳴磁場を最もよく再現する磁化の値(表4参照)を用いて式(25)によって計算した共鳴磁場、をそれぞれの系について示す。一番右の欄の結果は、2つのシグナルが観測された試料の実験値のみを用いて、それらを最もよく再現するパラメーターとして決めた $M_s^{10}$ (または $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ )を使っており、単一シグナルの共鳴磁場のデータはフィッティングを行うときに使われていないことに注意されたい。 $d = 10 \text{ \AA}$ でもまだ $J$ が十分に大きいとは言えないかも知れないので、貴金属層厚をもっと下げれば実測される共鳴磁場はこの表に示された左の欄の値より低くなるだろう。そう考えるとFe/Cu/Fe系ではあまり矛盾はないが、他の2つの系では明らかに、SQUIDによる実測値を用いた計算値(中央の欄)は実験結果(左の欄)と矛盾している。Fe/Ag/Fe系では、 $d = 10 \text{ \AA}$ において既にSQUID実測値による計算値762.0eより低いことになり、Fe/Au/Fe系で



	貴金属層厚 $d = 10\text{\AA}$ 試料の共鳴磁場 [Oe]	結合パラメーターが十分に大きい場合の 式(25)に基づく共鳴磁場 [Oe]	
		磁化 = 「SQUID 実測値」 (表2又は表5参照)	磁化 = 「共鳴磁場を 最もよく再現する値」 (表5参照)
Fe/Cu/Fe	700	683	666
Fe/Ag/Fe	720	762	706
Fe/Au/Fe	685	730	690

表 6 Fe 層間の強磁性的結合が強い場合の  
実測及び計算による共鳴磁場

も同様のことが読み取れる。このように強磁性的相互作用が非常に強い場合の共鳴磁場を説明するためにも、磁化  $M_s^{10}$  (または総磁化比  $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ ) の変更が必要になることがわかる。

第三の根拠として、Fe/Cu/Fe系とFe/Au/Fe系ではほぼ  $20\text{\AA}$  以下で単一のシグナルが観測されたのに対して、Fe/Ag/Fe系においては  $40\text{\AA}$  程度まで単一のシグナルが観測されたことを取り上げる。Fe/Ag/Fe系について結合パラメーター  $J'$  と共鳴磁場の相関を計算した図15とFe/Cu/Fe系について同様のことを行った図14を比較すればわかるように、磁化  $M_s^{10}$  (または総磁化比  $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ ) を変えた場合、横軸のスケールが変わっているのがわかる。図15のFe/Ag/Fe系では、図14のFe/Cu/Fe系のばあいと比べて、結合パラメーターがより小さい値で下側の光学モードがゼロ磁場に達しているのがわかる。つまり磁化  $M_s^{10}$  が小さいほど (または総磁化比  $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$  が大きいほど) 2つのシグナルが見られる  $J'$  の範囲が狭くなることになる。言い替えれば、Fe/Au/Fe系とFe/Cu/Fe系のようにFe/Ag/Fe系に比べて  $M_s^{10}$  の大きい (または総磁化比  $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$  の小さい) 系では、ある程度  $J'$  が大きくても2つのシグナルが現れるのに対してFe/Ag/Fe系では既に単一シグナルの領域に入っていることが2スピンモデルから結論される。上下2つの共鳴磁場の相関を再現するために  $M_s^{10}$  (または総磁化比  $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ ) をフィッティングパラメーターとしたことは、このようにシグナルの数の貴金属層厚への依存性から考えても正当なことであったと言える。



今までの議論で磁化  $M_s^{10}$  (または総磁化比  $d^{30}M_s^{30}/d^{10}M_s^{10}$ ) をフィッティングパラメーターとすることの根拠を示した。これらの物理量を変更すれば確かに実験結果をよく再現できることは、現象論的には十分に説明されたと思うが、ではその変更の背後にある本質、「物理」は何であろうか。

結合パラメーター  $J$  と共鳴磁場の関係は、§4の式(23)から求められる。ここで、この式を以下の議論で扱い易いように整理し直すと、

$$\begin{aligned} & \left[ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{30} \right] \cdot \left[ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{10} \right] \\ & - \frac{J}{d^{10} d^{30}} \left\{ d^{30} M_s^{30} (H + B^{10}) \left[ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{30} \right] \right. \\ & \quad \left. + d^{10} M_s^{10} (H + B^{30}) \left[ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{10} \right] \right\} \\ & - \left( \frac{J}{d^{10} d^{30}} \right)^2 (d^{30} M_s^{30} + d^{10} M_s^{10}) \left\{ d^{30} M_s^{30} \left[ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{30} \right] \right. \\ & \quad \left. + d^{10} M_s^{10} \left[ \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - H B^{10} \right] \right\} \\ & = 0, \quad \text{ただし } B^i = H - \Delta^i \quad (= H - 4\pi D^i M_s^i) \end{aligned} \quad (37)$$

この式からわかることは、 $d^i$  と  $M_s^i$  というパラメーターは別々にではなく、 $d^i M_s^i$  という組で式の中に入っているということである。 $J$  の分母の  $d^i$  は  $J$  のスケールを変えるだけで、共鳴磁場決定に本質的な役割をしない。このことは  $J$  ではなく  $J'$  で表すと

$$J / (d^{10} d^{30}) = J' / (d^{10} M_s^{10} \cdot d^{30} M_s^{30}) \quad (38)$$

となることからよくわかる。従って  $d^{10} M_s^{10}$  と  $d^{30} M_s^{30}$  の比：総磁化比  $R = d^{30} M_s^{30} / d^{10} M_s^{10}$  のみが、結合パラメーターの関数としての共鳴磁場の決定に関わっていることになる。解析において  $M_s^{10}$  を小さくしなければ実験結果を再現できなかったということは、総磁化比  $R$  を S Q U I D による実測値に基づく値より大きくしなければならなかったことを意味する。膜厚計によって測定した F e 層の厚さの絶対値に疑問があっても、その比  $d^{30}/d^{10} = 3$  には、まず信頼がおけるはずであるし、また  $M_s^{30}$  がバルク値 1710 Gauss より大きいとは考え難いので、仮に  $M_s^{10}$  の値を小さく取っていたわけである。F e (i Å) 層の自分自身の磁化  $M_s^i$  による反磁場の影響は、有効反磁場  $\Delta^i$  に含まれており、実験的にも  $M_s^i$  だけを  $\Delta^i$  から分離することはできない。従って、式(37)からもわかるように、 $d^i M_s^i$  は F e 層間の相互作用に関係した項にしか関わってこないで、この物理量が S Q U I D で測定されるような実際の磁化である必要はないことになる。

解析で用いた交換相互作用に関する界面エネルギー： $E_{ex} = -J \mathbf{M}^{10} \cdot \mathbf{M}^{30}$  は非常に単純な表現を取っている。実際の F e 層間の相互作用には、交換型の相互作用以外にも磁気双極子相互作用など他の型の相互作用がおそらく含まれているはずであり、この  $E_{ex}$  の表現は単純化しすぎていると言える。また F e 層間の相互作用を境界条件として取り入れた "Hoffmann の境界条件" (式(17), (18)) にも全く疑問がないわけではない。Pashaevら [26] が指摘し、Cochranら [27] が弁解しているように、この境界条件はあくまでも磁性体を連続体近似した場合に成立する条件であり、実際の磁性体に適用する場合には近似式として取り扱われるべきであろう。そのほかにも、局在磁気モーメントを本来もたない F e を 2 スピンモデルでは局在的イメージでモデル化している点にも問題



があるかもしれない。これらの様々な影響をひっくるめてF e 層間の相互作用を交換相互作用の形で表す場合、総磁化比Rが実測値とは異なった値，“effective R ” として振舞っていても何の不思議もないことになる。

## § 6 ま と め ( 1 )

F e / 貴金属 ( C u , A g , A u ) / F e 三層膜試料を作製し、介在する貴金属層の厚さの関数としてのF e 層間相互作用、特に交換相互作用の変化を強磁性共鳴モードを解析することによって評価した。

解析にあたっては、F e 層間の交換相互作用を考慮した2 スピンモデルを仮定し、このモデルが実際の系における共鳴磁場及びシグナル強度の変化を十分に再現することを確認した。実験で得られた共鳴磁場をモデル計算で得られた共鳴磁場と対比することにより、各試料に対してF e 層間の交換相互作用の大きさ及び符号を決定し、貴金属層の厚さの関数としてのF e 層間交換相互作用の変化を定量的に評価した。

F e 層間の相互作用は、強磁性共鳴でみる限り交換型であり、そのエネルギーは $-J \mathbf{M}^{10} \cdot \mathbf{M}^{30}$  という形で表わすことができるが、この表現における2つのF e 層の磁化は“effective ” なものと考えるべきである。



### III

F e 層間が弱い相互作用によって

磁氣的に結合した F e / A u 多層膜の物性

## § 1 実験のねらい

低次元磁性の研究は、物性物理学の中でも重要でかつ最も活発な研究分野の一つであり、様々な低次元物質に関する実験的研究も既に数多く行われている。「低次元磁性」といった観点から磁性多層膜（または人工格子）のような人工物質をとらえる場合、多層膜にはいくつかの利点がある。まず、第Ⅱ章でも見たように、磁性／非磁性の元素の組み合わせに於いて非磁性層の厚さを変えれば、磁性層間の相互作用をある程度制御できること、そして積層回数が自由に設定できるので磁性層の層数の制御ができること、である。水溶液中などで自然に出来る（もちろん条件の設定が必要だが）二次元磁性体では、面間の相互作用は与えられたものであり、相互作用の大きさが違う場合を測定したいときには別の物質を測定するしか方法がない。また試料の中の近似的に二次元磁性として振舞う面内相互作用の強い面の数は、出来た試料の大きさによって決ってしまう。人工物質である多層膜では、このような点での制限は殆どない。

多層膜には上で述べたような長所があるが、短所もないわけではない。例えば1原子層分の磁性物質を蒸着し名目上の二次元磁性体を作製しても、磁性原子のクラスタリングの影響の評価が難しく、たとえ低温度領域において磁化と温度の間に線形的な関係が観測されても、それが本当に二次元性に由来しているのか判断が難しいことである。従って、ここでは各々の磁性層の二次元磁性体としての不完全さはある程度認め、非磁性層の厚さの変化、すなわち磁性層間相互作用の変化、による物性の変化から、次元性の変化を評価しようと思う。つまり各磁性層の不完全さは、多層膜にした場合にもそれほど違い



はないはずであると考え。

この章では薄いFe層と厚いAu層よりなるFe/Au多層膜によって、面内には強く、面間には弱い相互作用をもつ擬二次元磁性体を作製する。前章においては、Fe/貴金属/Fe三層膜試料を作製し、強磁性モードを解析することによってFe層間の相互作用を定量的に見積った。細かな点を別にすれば、Fe層間の強磁性的相互作用は貴金属層の厚さによってほぼ指数関数的に減衰することがわかった。また貴金属層の厚さが20 Å以上では、相互作用の大きさは直接的に磁性体が接している場合のおよそ1万分の1のオーダーであることも判明した。この結果から考えれば、Au層の厚さを大きくすれば、Fe層間の相互作用は全般的に弱くなるから、三次元磁性から二次元磁性への次元クロスオーバーが観測できるはずである。また積層回数（またはFe層数）を変えることによる磁性の変化も観測する。ここで注意しておきたいのは、Fe層数という場合、Fe層の厚さを言っているのではないということである。多層膜でよく使う試料表示を使用すれば、[Fe(x Å)/Au(y Å)]<sub>n</sub>という場合のnのことをいっているのである。Fe層数nの磁性への影響は次のように考えられる。Au層の厚さが同じ、すなわちFe層間の相互作用の大きさが同じ場合でも、Fe層数が少ないほど、膜面に垂直方向のスピン波の成分が小さくなる。このとき膜面に垂直方向に0でない成分をもつスピン波は励起エネルギーが高くなり、低温度領域ではこのようなスピン波は熱的に励起されにくくなるので、低温度領域で測定を行えば二次元性がより顕著に現れると期待できる。

物理量としては、SQUIDによって磁化と帯磁率の温度変化を測定する。磁化測定に関しては、磁化Mと温度Tの間には低温度領域において、

$$1 - M/M_0 = CT^\alpha, \quad (39)$$

という関係が成立していることが、スピン波近似による計算から求められている。ただし、 $M_0$ は絶対0度における磁化、Cと $\alpha$ は試料に固有の定数である。系が三次元の場合には $\alpha = 3/2$ （Blochの $T^{3/2}$ 則）が成立し、二次元の場合には $\alpha \sim 1$ が成立することがわかっている。従って磁化の温度変化から、各試料に対しこの $\alpha$ を決定し、 $\alpha$ のAu層厚やFe層数への依存性を調べれば、Fe/Au多層膜の磁性的な次元のFe層間相互作用やFe層数への依存性が評価できることになる。

帯磁率測定に関しては、温度を上げながら外部磁場を0磁場付近で振り、磁化の変化から線形帯磁率 $\chi$ を各温度に対して求める。 $\chi$ の極大となる温度を磁気転移温度と見なし、転移温度とFe層間相互作用の相関を評価する。当初のねらいでは、転移温度近傍の $\chi$ の振舞いから臨界指数を求めて次元性の議論をする予定であったが、 $\chi$ がべき乗則にのらないのでこの目論見は断念した。この原因としては、 $\chi$ として線形帯磁率のみを取り上げたことや、多層膜に含まれるFe層の転移点の分布等が考えられるが、詳細は後述する。



## § 2 試料の作製及び評価

試料の作製に使用する超高真空蒸着装置の概要及び準備から作製に至るまでの手順は II 章の § 2 に示したものと同一である。ただし、帯磁率測定用の試料は、Fe 層の厚さが  $2 \text{ \AA}$  と薄く、Au 層内への Fe 原子の拡散が起こるおそれがあったので、蒸着時の基板温度を  $-50^\circ\text{C}$  としたことは三層膜作製の場合とは異なっている点である。基板温度を  $-50^\circ\text{C}$  とするためには、蒸着装置上部の基板保持部を通っているパイプに液体窒素を注ぎ込み、基板ホルダーに一端がある熱電対に基づく温度表示が  $-50^\circ\text{C}$  となるように少量の液体窒素を時々補充する必要があった。この液体窒素の補充にはかなりの熟練を必要とし、初期の段階で  $\pm 15^\circ\text{C}$  くらい、かなり慣れた段階でも  $\pm 5^\circ\text{C}$  くらいの温度の変動は避けられなかった。表 7 に蒸着時の平均的なコンディションを示す。

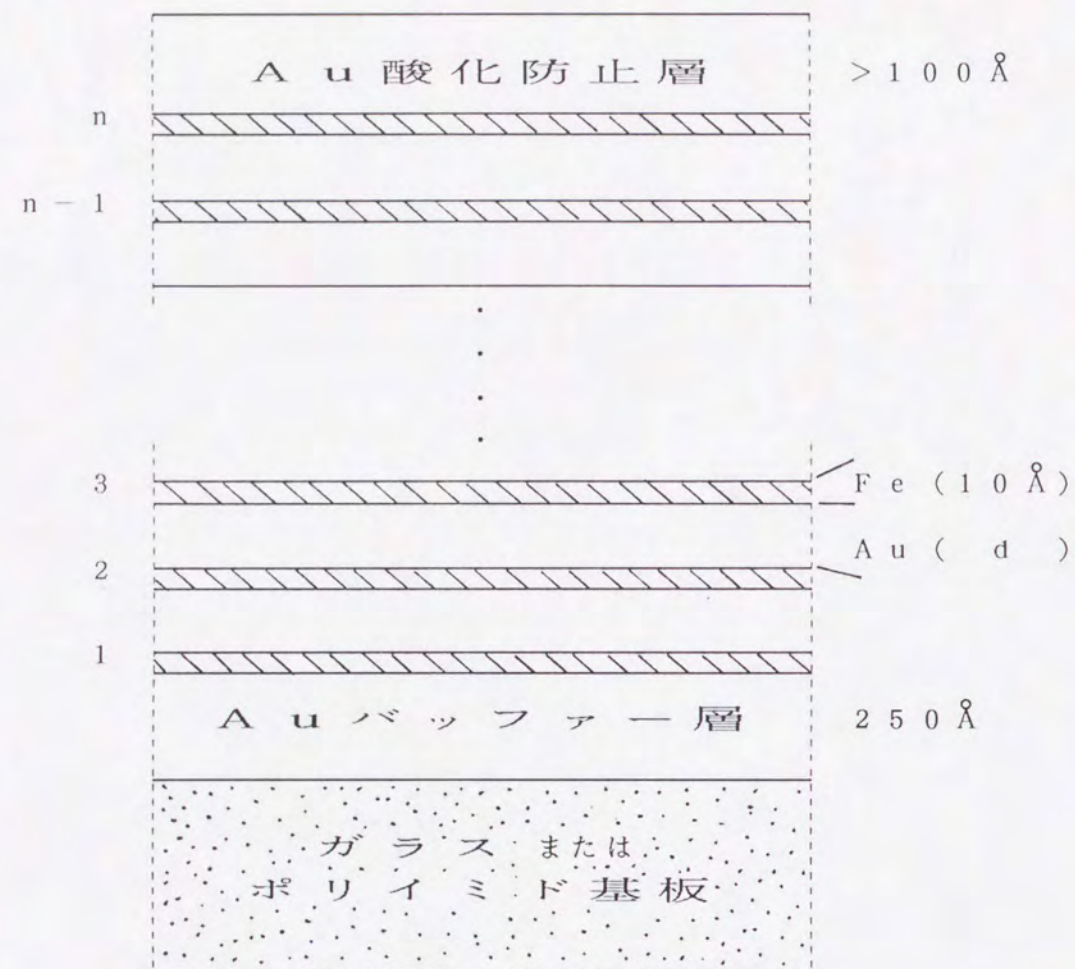
磁化測定用に作製した試料の構造概念図を図 2 1 に示す。基板としては、構造評価のための X 線回折用試料にはガラスを、磁化測定用試料にはポリイミドを使用した。この試料においては、 $250 \text{ \AA}$  の Au バッファ層上に多層膜  $[\text{Fe}(10\text{\AA})/\text{Au}(d)]_n$  を蒸着し、 $d$  が  $100 \text{ \AA}$  以下の場合には、酸化防止のために最上層の Au の厚さが少なくとも  $100 \text{ \AA}$  となるようにさらに Au を蒸着した。多層膜中の Au 層の厚さ  $d$  は  $20$ 、 $50$  または  $100 \text{ \AA}$  とし、各厚さ  $d$  に対して積層回数  $n$  を  $1$  から  $12$  の間で変えた一連の試料を作製した。ただし、 $d$  によっては  $1$  から  $12$  まで全ての整数値を取って  $n$  を変えて試料を作製したわけではない。

Fe 層の厚さを  $10 \text{ \AA}$  とした理由を以下に述べる。我々と同じ超高真空蒸着法によ

			基板 温度	蒸着 速度 [Å/秒]	蒸着中 真空計示度 [Torr]	電子銃電源	
						電流[mA]	電圧[kV]
磁 化 測 定 用	Auハーフ層		室温	0.3	$\sim 2 \times 10^{-8}$	350	35
	多 層 膜	Fe		0.2	$\sim 1 \times 10^{-8}$	50	40
		Au		0.2	$\sim 2 \times 10^{-8}$	350	35
	Au酸化防止層			0.3			
帯 磁 率 測 定 用	Auハーフ層		室温	0.3	$\sim 2 \times 10^{-8}$	350	35
	多 層 膜	Fe	-50℃	0.1	$\sim 1 \times 10^{-8}$	50	40
		Au		0.2	$\sim 2 \times 10^{-8}$	350	35
	Au酸化防止層			0.3			

表 7 蒸着時の平均的なコンディション  
(多層膜)





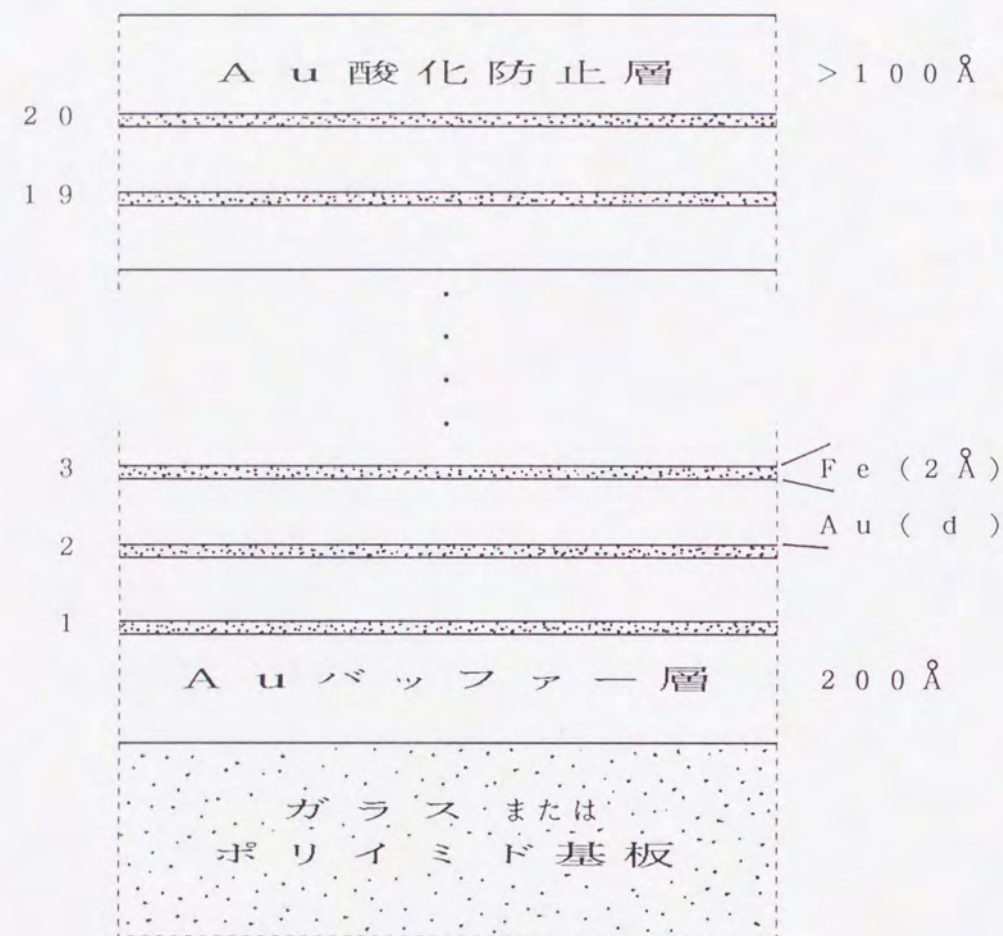
$$\text{Au}(250\text{\AA}) / [\text{Fe}(10\text{\AA}) / \text{Au}(d)]_n / \text{Au}(100\text{\AA}-d)$$

図 2 1 磁化測定用 Fe / Au 多層膜の構造概念図

って Fe / Au 多層膜を作製した Marlièreら [28] の報告によれば, Fe 層の厚さが 10 から 200  $\text{\AA}$  の範囲にあるとき, Fe 層は bcc 構造をとり, その (110) 面を Au 層の (111) 面と平行に成長している. そして Fe 層の厚さが 15  $\text{\AA}$  以下のとき, Fe 層の表面の平坦性がかなり良いことがわかっている. 我々の実験の目的では, 各 Fe 層はできる限り二次元磁性体として振舞ってほしいので, Fe 層は可能な限り薄く, かつ解析時のモデル設定を簡単にするために, 構造はアモルファス状にならずに決まった構造を取る必要がある. そこで Marlièreらの結果を参照して Fe 層の厚さを 10  $\text{\AA}$  とした. 10  $\text{\AA}$  の Fe 層はおよそ Fe 原子 5 原子層分に相当し, この程度薄ければこの 10  $\text{\AA}$  層の膜面垂直方向に立つスピン波の励起エネルギーは, 膜面内方向のスピン波の励起エネルギーに比べて十分に大きくなるはずであるから, 低温度領域では近似的に二次元磁性体として取り扱ってよいことになる.

図 2 2 に帯磁率測定用の試料の構造概念図を示す. 基板としては, 構造評価の為に X 線回折用にガラスを, 帯磁率測定用にはポリイミドを使用した. バッファ層として Au を 200  $\text{\AA}$  蒸着し, その上に多層膜  $[\text{Fe}(2\text{\AA}) / \text{Au}(d)]_{20}$  を蒸着した. この試料の場合も, 最上層の Au 層厚が全ての試料に対して 100  $\text{\AA}$  以上になるように配慮した. 積層回数は 20 回と統一し, 多層膜中の Au 層厚 d は 5 から 200  $\text{\AA}$  の範囲で設定した. Fe 層厚として 2  $\text{\AA}$  を選んだのは, SQUID において測定のしやすい室温以下に転移温度が現れるようにするためである. Fe 層厚を 2  $\text{\AA}$  とし, かつ基板を  $-50^\circ\text{C}$  に冷却しているため, Fe 層はアモルファス的な構造を取っていると考えられる. 従って転移温度をキュリー温度と呼んでよいかには疑問が残るが, 帯磁率が極大値を取る温度を転移温





$\text{Au}(200\text{\AA}) / [\text{Fe}(2\text{\AA}) / \text{Au}(d)]_{20} / \text{Au}(100\text{\AA}-d)$

図 2 2 帯磁率測定用 Fe / Au 多層膜の構造概念図

度と呼ぶならば、詳しい実験結果は § 4 の 4. 2 で述べるが、我々の試料は確かに室温以下にはっきりとした転移温度を持っている。（相）転移の性格が明確に把握されていなくても、転移温度が各試料に対してははっきり同定できる以上、それを層間相互作用のプロープとして利用することはできるはずである。むしろ磁氣的にゆらぎが大きいような系ほど、より小さい磁氣的相互作用に敏感ではないかという予測も成り立つ。このような発想は、スピングラス層を含んだ多層膜のスピングラス転移温度がスピングラス層間の相互作用（RKKY相互作用）にきわめて鋭敏であるという実験結果 [29, 30] から支持されるかもしれない。スピングラス転移も相転移としてはまだはっきりとしたことはわかっていないが、それをプロープとして利用することはできるわけである。なお、 $d = \infty$  のレファレンス用試料として、 $\text{Au}(200\text{\AA}) / \text{Fe}(2\text{\AA}) / \text{Au}(100\text{\AA})$  の Fe 単層膜試料も作製した。この場合の  $\text{Au}(200\text{\AA})$  バッファ層は、多層膜の場合と同じように基板温度を室温のままで蒸着し、Fe 層は  $-50^\circ\text{C}$  で蒸着した。

作製した試料の構造評価は、低角度領域での X 線回折によって行った。磁化測定用の多層膜の中で代表として、多層膜  $[\text{Fe}(10\text{\AA}) / \text{Au}(50\text{\AA})]_{12}$  の低角度領域における X 線回折パターンを図 2 3 に示す。 $60\text{\AA} (= 10\text{\AA} + 50\text{\AA})$  の人工周期に相当する回折ピークが 4 次まで確認できる。図 2 4 には、帯磁率測定用の多層膜の中で代表として、多層膜  $[\text{Fe}(2\text{\AA}) / \text{Au}(90\text{\AA})]_{20}$  の低角度領域での X 線回折パターンを示す。人工周期  $\sim 90\text{\AA}$  に相当する回折ピークが 9 次まで確認できる。1 次及び 2 次のピークは直接に入射する X 線のカウント中に埋もれてしまい分離できない。この系では、Au 層が厚いほどピークがより高次まで現れる傾向があり、Au 層厚  $d$  がおよそ  $20\text{\AA}$  以上で 4



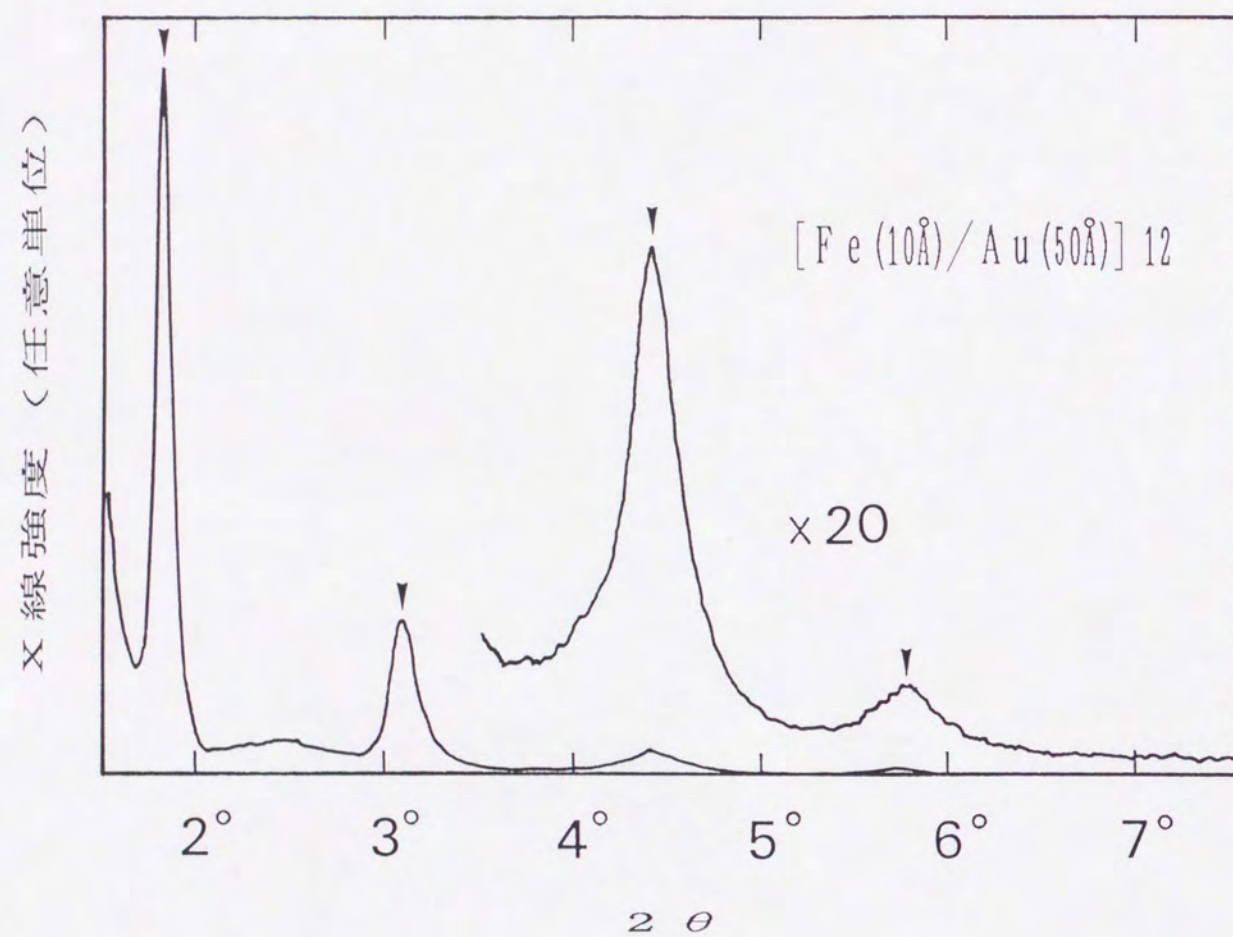


図 2 3 磁化測定用 F e / A u 多層膜の X 線回折パターン

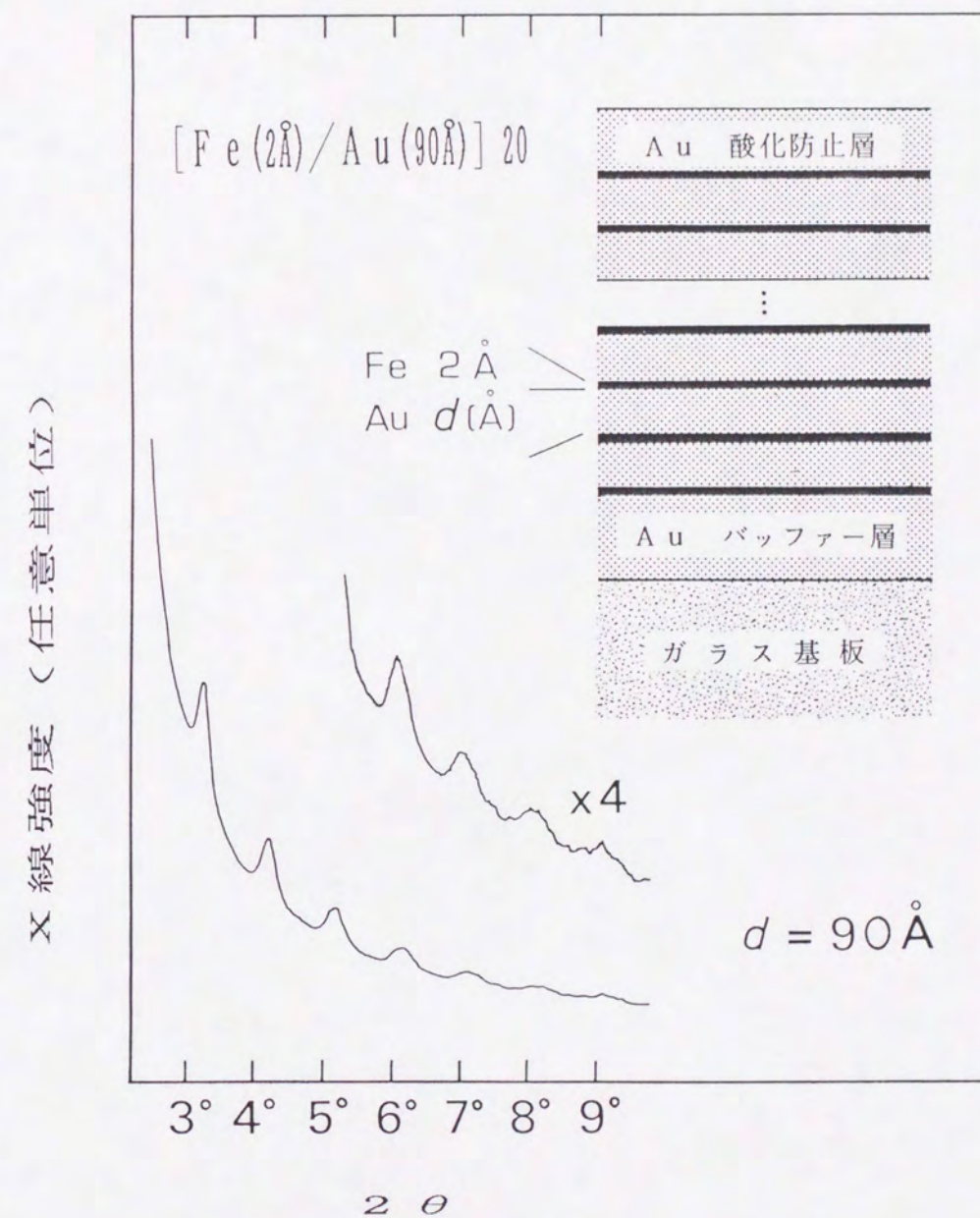


図 2 4 帯磁率測定用 F e / A u 多層膜の X 線回折パターン



次以上のピークが観測できる。蒸着中の基板温度を $-50^{\circ}\text{C}$ にした為に、Fe層とAu層の界面のけじめがかなり良くなっているようである。磁化測定用の $[\text{Fe}(10\text{\AA})/\text{Au}(d)]_n$ の系においても、帯磁率測定用の $[\text{Fe}(2\text{\AA})/\text{Au}(d)]_{20}$ の系においても、各Fe層は十分な平坦性を持ち、Fe層とFe層はAu層によって明瞭に分離されていると結論できる。次元クロスオーバーを議論するにはまず十分な多層構造を我々の試料はとっているとよい。

### § 3 実験 A ( 層間相互作用による次元クロスオーバー )

#### 3. 1 実験

この実験では、 $[\text{Fe}(10\text{\AA})/\text{Au}(d)]_n$  多層膜の磁化の温度依存性を調べる。測定用の試料は、ポリイミド基板上に蒸着した試料から $30\text{mm} \times 40\text{mm}$ の大きさに切り取った。切り取った試料は半分に折り畳む操作を4回繰り返して、ほぼ $10\text{mm} \times 7.5\text{mm}$ の大きさにまで折り畳んだ後、あらかじめ切り込みを入れておいた直径およそ5mmのストローに、折り畳んだ試料を差し込んだ。特に何らかの固定をしなくても、試料がストロー内で動くことはなかった。

磁化測定にはSQUIDを使用した。測定温度は10Kから90Kの範囲内で数点を選んだ。10kOeの外部磁場を試料の膜面内方向にかけて、各温度において磁場方向の磁化を10回測定し、その平均値と標準偏差を求めた。10kOeの磁場のもとでは、磁化は十分に飽和している。このことは、VSMによって測定した $-10\text{kOe}$ から10kOeまで外部磁場をかけたときの磁化カーブからも確認される。代表として、多層膜 $[\text{Fe}(10\text{\AA})/\text{Au}(50\text{\AA})]_4$ の磁化カーブを図25に示す。式(39)の温度と磁化の相関の式では、絶対0度における磁化を基準にとってあるが、実験的にはそれは不可能なので、10Kでの磁化の値を基準にすることにした。なおストローとポリイミドの磁性の影響を見るために、ストローに測定試料と同じ面積のポリイミド( $30\text{mm} \times 40\text{mm}$ )を入れたものの磁化測定も行った。



外部磁場 // 試料膜面

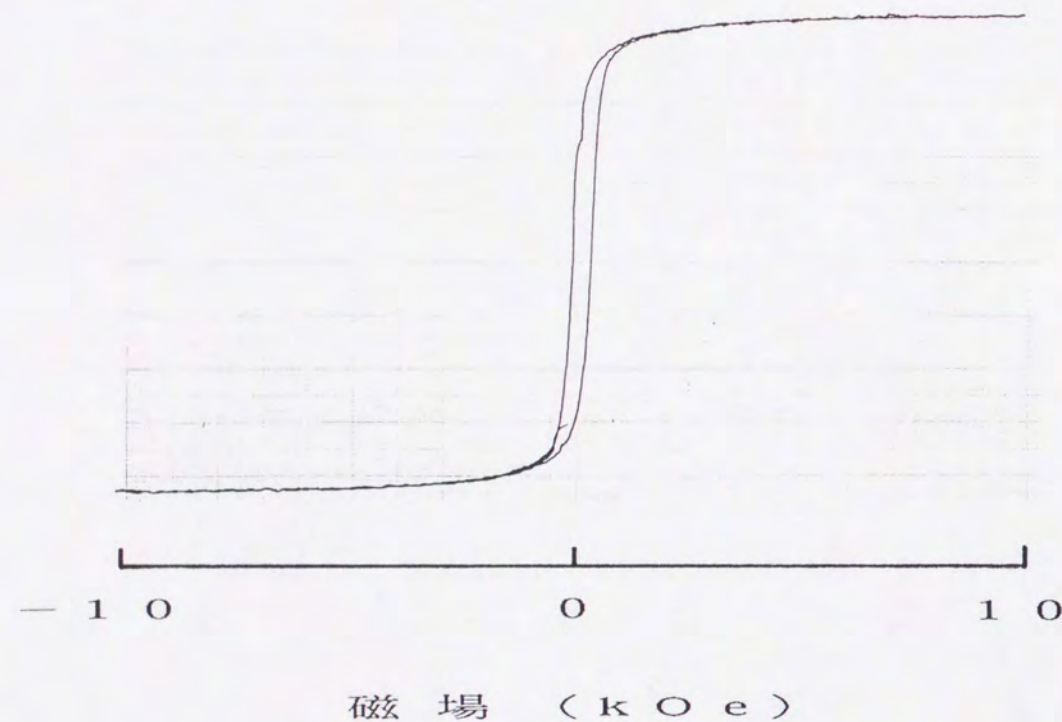


図 2 5 多層膜  $[\text{Fe}(10\text{\AA})/\text{Au}(50\text{\AA})]_4$  の磁化カーブ

### 3. 2 実験結果

SQUIDによって測定した各試料の磁化の値は、10 Kから90 Kの温度範囲において、 $30\text{ mm} \times 40\text{ mm}$ の面積の試料の実測値そのまま  $10^{-2}\text{ emu}$ のオーダーであり、10回の測定による標準偏差は  $10^{-6}\text{ emu}$ のオーダーであった。Fe層の数が増えるに従って、当然の事ながら、どちらの値も増加する傾向を示した。ストローとポリイミドのみによる磁化は  $10^{-5}\text{ emu}$ のオーダーであり、試料の測定値は試料中のFe層のみに由来する磁化の値とほぼ見なしてよいことがわかる。

得られた磁化と温度の相関は、

$$1 - [M(T) / M(10\text{ K})] = C T^{\alpha}, \quad (40)$$

に従うと仮定する。ただし  $M(T)$  は温度  $T$  Kにおける飽和磁化の値である。実験から求めた「磁化減少の割合」 $1 - [M(T) / M(10\text{ K})]$ と温度  $T$ を  $\log\text{-}\log$ スケールでプロットし、最小二乗法により各試料に対して係数  $C$ と指数  $\alpha$ を求めた。最小二乗法を行うにあたっては、測定で得られた標準偏差の逆数を「重み」として取り入れた。

図26に多層膜  $[\text{Fe}(10\text{\AA})/\text{Au}(50\text{\AA})]_2$ と  $[\text{Fe}(10\text{\AA})/\text{Au}(50\text{\AA})]_{12}$ についての実験結果と最小二乗法によるフィッティング結果を示す。二つの試料においては、積層回数(Fe層数)が2回と12回とかなり違っているが、どちらの場合も  $\log\text{-}\log$ スケールのグラフにおいて、 $1 - [M(T) / M(10\text{ K})]$ と  $T$ の関係がほぼ直線的になり、最小二乗法で決めた直線とのフィッティングはよい。他の試料の場合も、同程度のフィッティング結果を与えたが、図26でもわかるように10 K付近で直線からのズレ



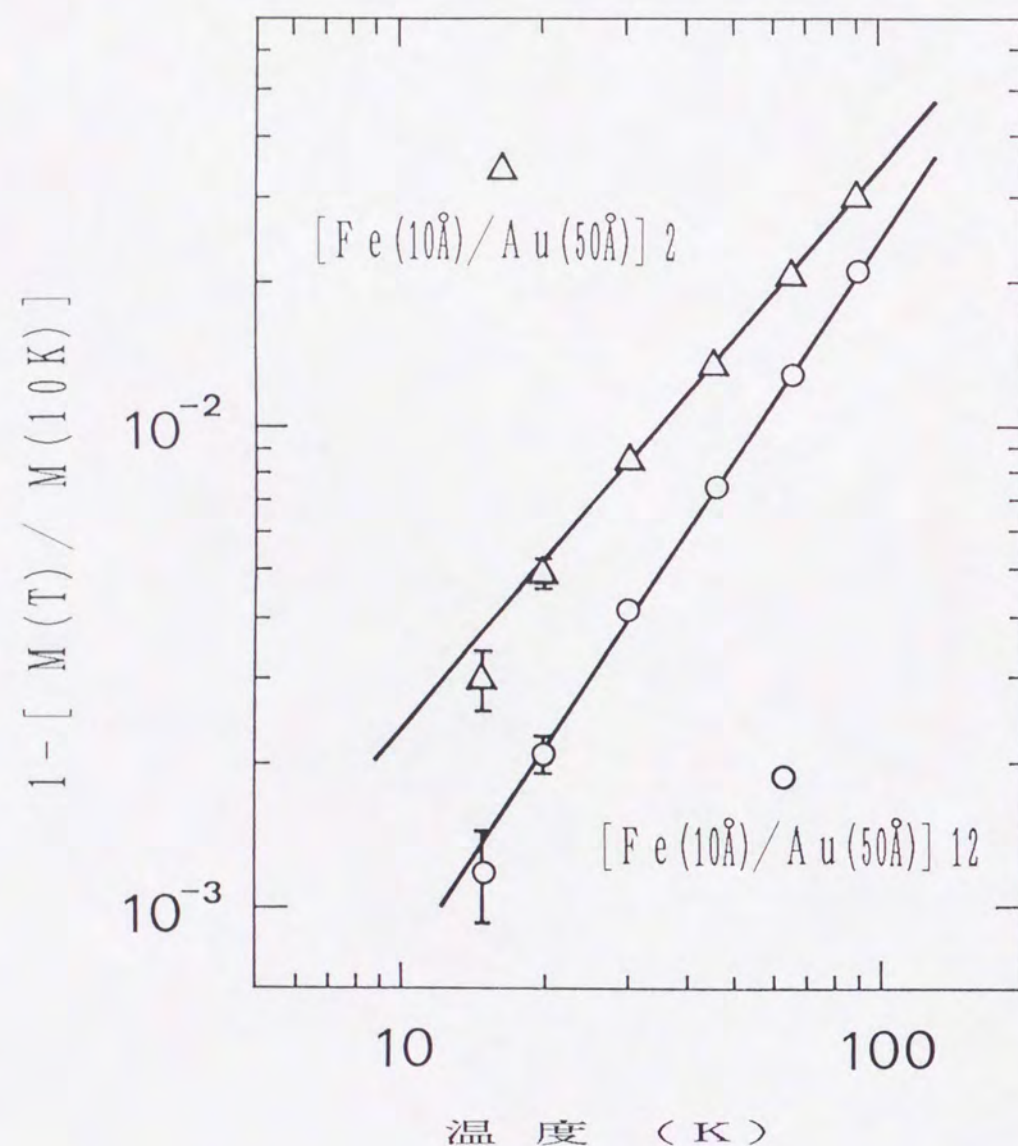


図 2 6 磁化減少の割合  $1 - [M(T)/M(10K)]$  と温度  $T$  との相関

実験結果及び最小二乗法によるフィッティング結果（代表例）

が幾分目立っている。これは  $10 \sim 15$  K 付近から低温にかけてポリイミドの磁化が急に大きくなることと関係していると考えられる。積層回数の少ない試料 ( $\Delta$ ) は、ポリイミドの磁化の寄与が大きいはずであるから、 $\Delta$  のほうが  $\circ$  よりズレが大きいのも納得できる。厳密にはポリイミドの磁化を差し引いた値で考えるべきであろう。しかし  $\log\text{-}\log$  スケールで考える場合には、図からもわかるように、温度が下がって基準に取った  $10$  K に近づき、磁化の大きさが  $10$  K での値に近づくほどエラーバーが拡大されるので、重みを付けた最小二乗法でフィッティングを行うにあたっては、低温度ほどフィッティングにはあまり効いてこなくなる。従って  $10 \sim 15$  K 以下でのポリイミドの磁性の影響は、フィッティングの結果にそれほど大きな影響を与えるとは考えられない。

以上のような方法で各試料に対して求めた係数  $C$  と指数  $\alpha$  を積層回数 (Fe 層数) の関数として、各々図 2 7 と図 2 8 に示す。係数  $C$  の物理的な意味はあまり明らかではない。バルク試料の場合でさえ、実験で得られた係数  $C$  の値は、スピン波近似によって理論的に計算された値とあまりよく一致しないことが知られている。しかしながら、図 2 7 を見るとわかるように、積層回数  $n$  への係数  $C$  の明らかな依存性が確認できる。係数  $C$  と積層回数  $n$  は、ほぼ反比例する傾向があることが確認できる。データ点が少ないためにはっきりとは言えないが、積層回数  $n$  が増加した時に係数  $C$  が近づく飽和値は、Au 層厚  $d$  によって違うことも読み取れる。

指数  $\alpha$  に関しては、Au 層厚  $d$  に関わらず、積層回数  $n$  によってほぼ単調に増加する傾向が認められる。二次元磁性的な  $\alpha \sim 1.0$  から三次元的な  $\alpha \sim 1.5$  へのクロスオーバーが確認できる。特に  $n > 7$  において、Au 層厚  $d$  の違いによる  $n$  の関数として



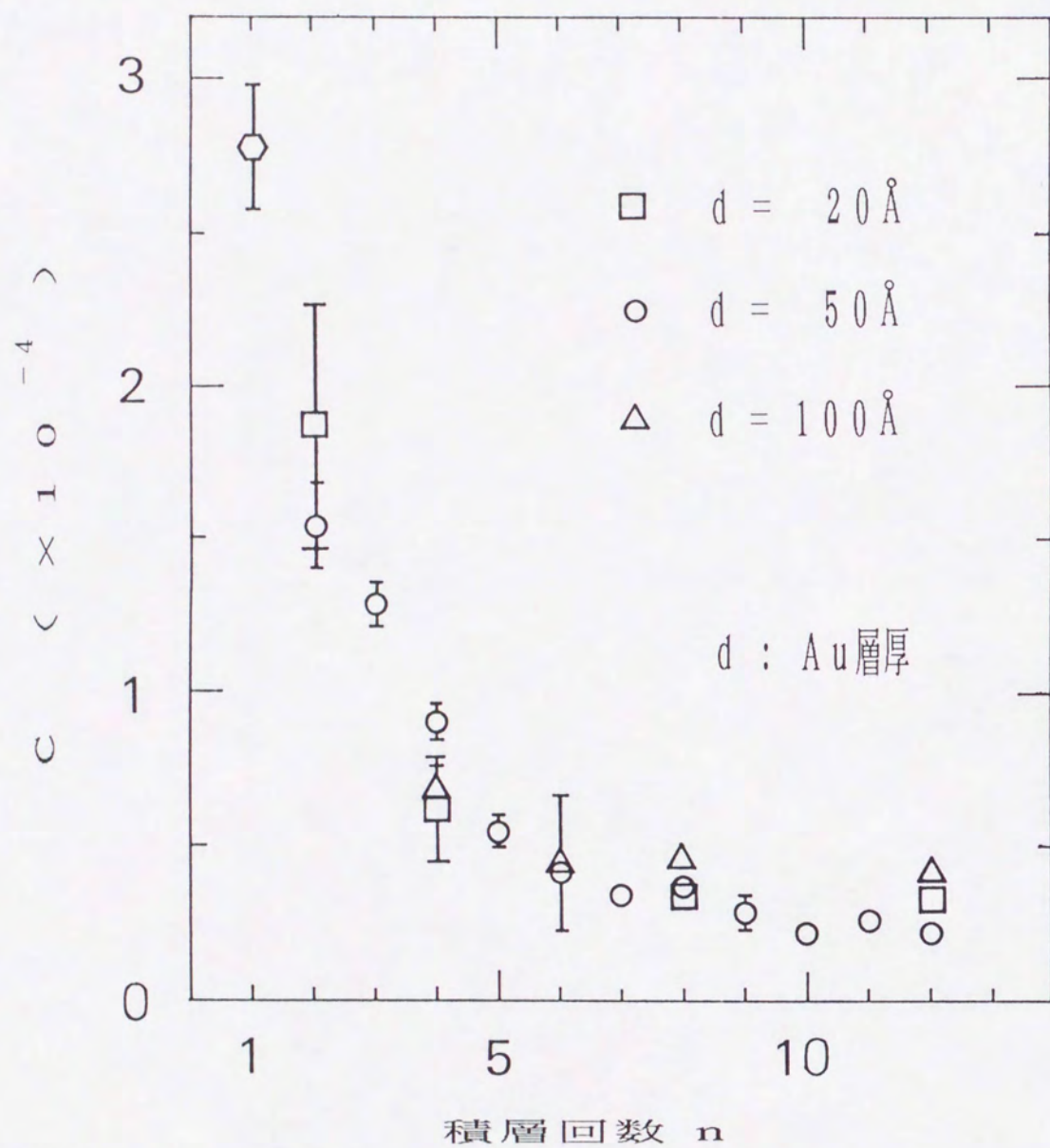


図 2.7 係数  $C$  の積層回数  $n$  への依存性

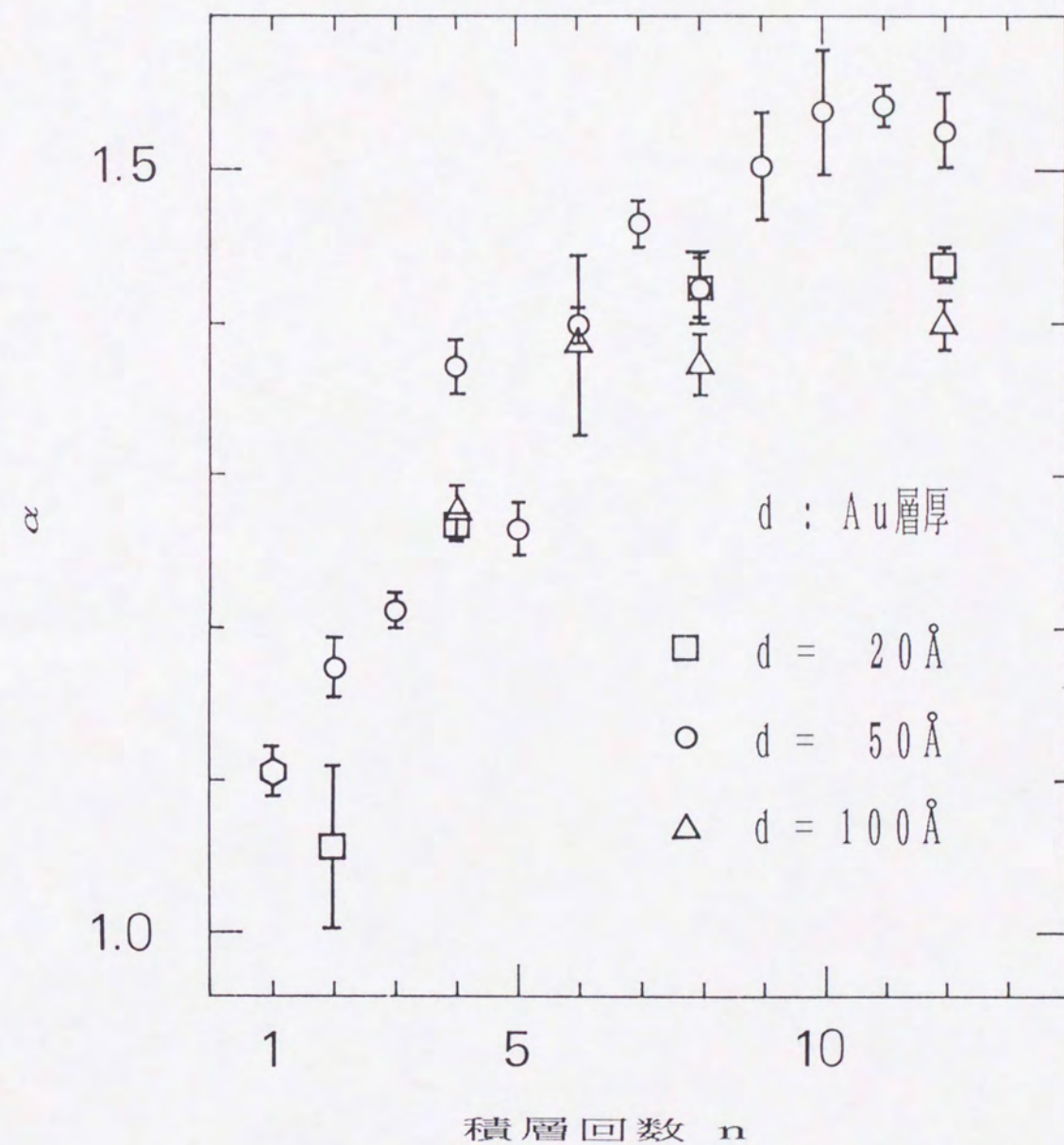


図 2.8 指数  $\alpha$  の積層回数  $n$  への依存性



の $\alpha$ の振舞いの違いがわかる。この実験で作製した積層回数の範囲でみると、 $n$ が増加したときに $\alpha$ が行き着く先は、 $d = 20 \text{ \AA}$ の試料に対しては  $1.44 \pm 0.02$  ( $= \alpha s^{20}$ )、 $d = 50 \text{ \AA}$ の試料に対しては  $1.53 \pm 0.06$  ( $= \alpha s^{50}$ )、そして  $d = 100 \text{ \AA}$ の試料に対しては  $1.40 \pm 0.04$  ( $= \alpha s^{100}$ )と見積ることができる。

このことはFe/Au多層膜の磁化の温度依存性は、Fe層間のAu層の厚さによって影響を受けることを示している。すでにII章において示したように、Fe層間の相互作用の大きさや符号はAu層厚に依存することがわかっている。従ってこの実験において見られた、Au層厚 $d$ によって磁化の温度依存性が異なっているという結果は、Fe層間の相互作用の違いによってFe/Au多層膜の磁性的な次元が違ってくるという事実を示唆している。ただひとつ理解し難いのは、図28で見る限りでの $\alpha$ の飽和値の大小関係、 $\alpha s^{100} < \alpha s^{20} < \alpha s^{50}$ であろう。なぜならばAu層厚が小さいほどFe層間の強磁性的相互作用が強いことがII章の実験でわかっているため、 $d = 50 \text{ \AA}$ の試料より $d = 20 \text{ \AA}$ の試料の方がより三次元的に振舞うはずだと予想されるからである。一つの解釈は、積層回数が12回程度ではまだ $\alpha$ が飽和値に達していず、積層回数をもっと増やせば $\alpha s^{20}$ は $\alpha s^{50}$ より大きくなると考えることである。この点については、スピン波近似による計算に基づいて再び議論する。

$n = 1$ の単一Fe層の試料において、その磁化が温度に対してほぼ線形的な依存性、 $\alpha = 1.1$ を示している。これが本当に試料の二次元性にも基づくのか、それともFe原子のクラスタリングによる超常磁性がこの線形依存性の原因になっているのかは、判断し難い点である。Ni-Fe合金においては合金層を数原子層の厚さまで薄くして

も、試料が三次元的振舞いをしたという報告[31]がある。我々の試料がおよそ5原子層の厚さであるということを考えれば、この線形依存性が次元性に基づくと言うよりも超常磁性的なものによると考えるべきかもしれない。しかしながら次元クロスオーバーを観察するという観点から考えた場合には、各Fe層の構造的な不完全さは多層膜にした場合にも大きな変化はないはずであるから、積層回数やAu層厚の変化による磁性の変化は、やはり次元性の変化としてとらえてよく、各Fe層の磁性は実験結果の解釈に本質的な影響を与えないであろう。 $n = 1$ で三次元性 $\alpha \sim 1.5$ を示すよりも、二次元性(または擬二次元性) $\alpha \sim 1.0$ を示したほうが、 $n$ を増加させたときの $\alpha$ の変化がより明確になってよいと考えることもできる。



### 3. 3 モデル設定及びスピン波近似による計算

Fe/Au多層膜によって実験的に得られた、温度の関数としての磁化の変化のFe層間相互作用やFe層数への依存性を、モデルを導入して理論的に考察する。基本となる考え方は、Kleinら[32]やGlassら[33]が強磁性薄膜について、スピン波近似によってその磁化の温度変化を議論した方法と同じである。しかし、彼らが一種類の交換積分だけを導入したのに対して、ここでは二種類の交換積分JとJ'を導入する。注意してほしいのは、これらのJとJ'はII章で扱った結合パラメーターとは違い、JはFe層内の交換積分、J'はFe層間の交換積分を表していることである。Fe層間の相互作用は、直接的に磁性体が接触している場合の相互作用と比べても、十分に小さいことがII章で結論されたので、我々の試料の場合にはJ' < Jが成立している。なお以下の議論はスピン波理論のごく簡単な演習程度に過ぎないが、オリジナルなものであり、ほぼ同じ時期に同じ様な考え方で多層膜の磁性の計算を行ったGutierrezら[34]、Quiら[35]あるいはMacciòら[36]とは独立なものである。彼らが反強磁性的相互作用も含んだもっと一般的な相互作用の場合を扱っているのに対して、強磁性的相互作用のみについてではあるが積層回数(Fe層数)への依存性も取り扱っているのが、以下で述べる取扱いの特徴である。

多層膜について議論する前に、まず我々の試料における10 ÅのFe層を二次元磁性体として見なしてよいことを議論する。なおFeは完全な局在磁気モーメントを持たないが、ここでは局在的な描像で取り扱うものとする。いまN×N×N<sub>z</sub>個のスピンを持つ単一の薄膜(N >> N<sub>z</sub>)を考える。Nは格子定数を単位とした結晶のxまたはy方

向の大きさ、N<sub>z</sub>は同様に格子定数を単位としたz方向の大きさである。つまりここでは、xy平面と膜面が平行であり、z方向は膜面に垂直になっている。各スピンは最近接スピンと交換積分Jで交換相互作用を及ぼしあっているとする。xまたはy方向とz方向に進行するスピン波の第一励起エネルギーはそれぞれ、

$$\varepsilon_{x,y} \sim S z J (\pi/N)^2, \quad (41)$$

$$\varepsilon_z \sim S z J (\pi/N_z)^2, \quad (42)$$

と評価できる。ただしSはスピン量子数、zは最近接スピン数である。いまは薄膜の場合を取り扱っているのでN >> N<sub>z</sub>よりε<sub>x,y</sub>/ε<sub>z</sub> << 1が結論付けられるが、更に適当な数値を代入してエネルギーの大きさを見積ってみる。S = 1, z = 8, J = 2.76 × 10<sup>-14</sup> erg (Feのバルク値), N = 100, N<sub>z</sub> = 5と仮定してみると、ε<sub>x,y</sub> ~ 2 K, ε<sub>z</sub> ~ 600 Kとなる。(ただしここでzとしてとった値にはあまり意味はない。)測定を行った温度範囲10 ~ 90 Kでは、膜面に垂直方向に成分を持ったスピン波はほとんど励起されないことがわかる。つまりz方向に縦に並んだN<sub>z</sub>個のスピンは同位相(波数=0)で運動し、一つのスピンと見なすことが出来る。N×N×N<sub>z</sub>個のスピンを含んだ薄膜は、実質的にN×N個のスピンを含んだ二次元磁性体と考えてよいことがわかる。

次に、n枚の薄い磁性薄膜が各々非磁性層によって隔てられている多層膜の場合を考える。各々の磁性薄膜は上で述べたものと同じとする。概念図を図29に示す。ここで非磁性層を介した磁性層間の交換積分をJ'とする。いま次のような励起状態を考



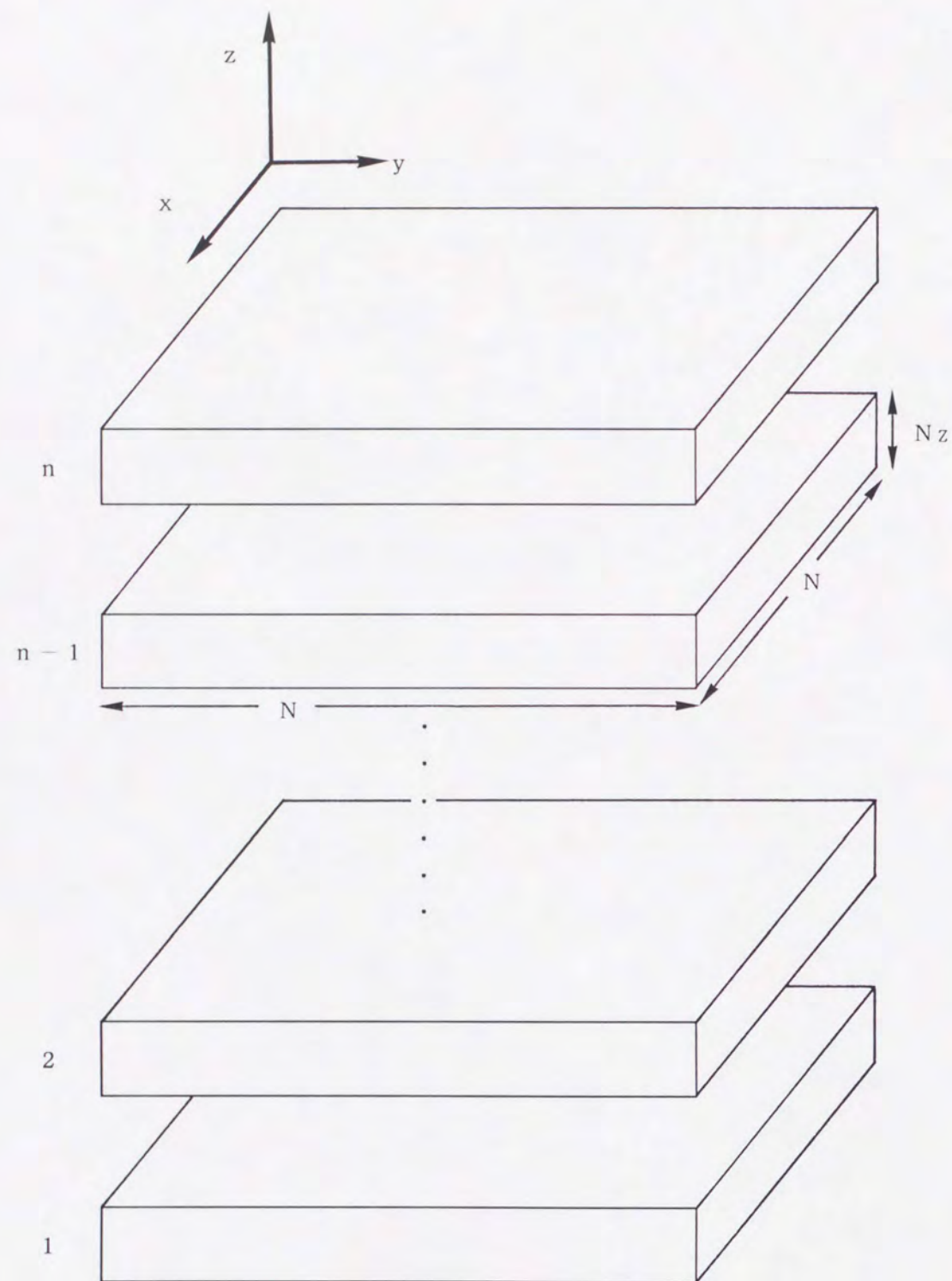


図 2 9  $N \times N \times N_z$  の大きさの磁性薄膜  
を  $n$  枚含むモデル多層膜

える。すなわち、各々の磁性薄膜内でのスピン波ベクトルの  $z$  成分は 0 であるが、多層膜全体を通じて  $z$  方向に 0 でない成分を持つスピン波が励起されている状態（図 3 0）である。このような励起状態の第一励起エネルギーを  $\varepsilon_{z'}$  とすると、

$$\varepsilon_{z'} \sim S z' J' (\pi/n)^2, \quad (43)$$

と評価できる。ただし  $z'$  は最近接膜数である。この  $\varepsilon_{z'}$  と式 (42) の  $\varepsilon_z$  を比較すると、我々の多層膜では  $J' \ll J$  が成立しており、 $z'$  と  $z$  及び  $N_z$  と  $n$  は同程度のオーダーであるから  $\varepsilon_{z'} \ll \varepsilon_z$  が成立していることがわかる。先ほどの単一の磁性薄膜の議論と併せて考えると、実験を行ったような低温度領域においては、各磁性薄膜は二次元磁性体と見なすことができ、我々のモデルは非磁性層で隔てられた  $n$  枚の 1 原子層磁性体と等価であることになる。ただしこの見方が現実の物質において成り立つのは、磁性層内の相互作用の大きさが磁性層間の相互作用の大きさに比べてはるかに大きい場合である。 $J$  と  $J'$  の大きさが同程度になってくると、各々の磁性層内で  $z$  方向に 0 でない成分を持つスピン波の影響が無視できなくなるために、磁性層の厚さを考慮に入れなければならない。

以上の議論から各 Fe 層を 1 原子層の磁性体と見なすことの正当性が確認された。そこで以下では、 $n$  枚の原子面から成り立っているモデルを取り扱う。実際の Fe/Au 多層膜において Fe 層は (110) 面を試料膜面に平行に配向しているので、1 つの原子面上に  $2N^2n$  個のスピンを配置し、面内での最近接スピン数を 8 とした。これはスピン配置では (110) 面の断面を考えたが、最近接スピン数を与える場合には実際の



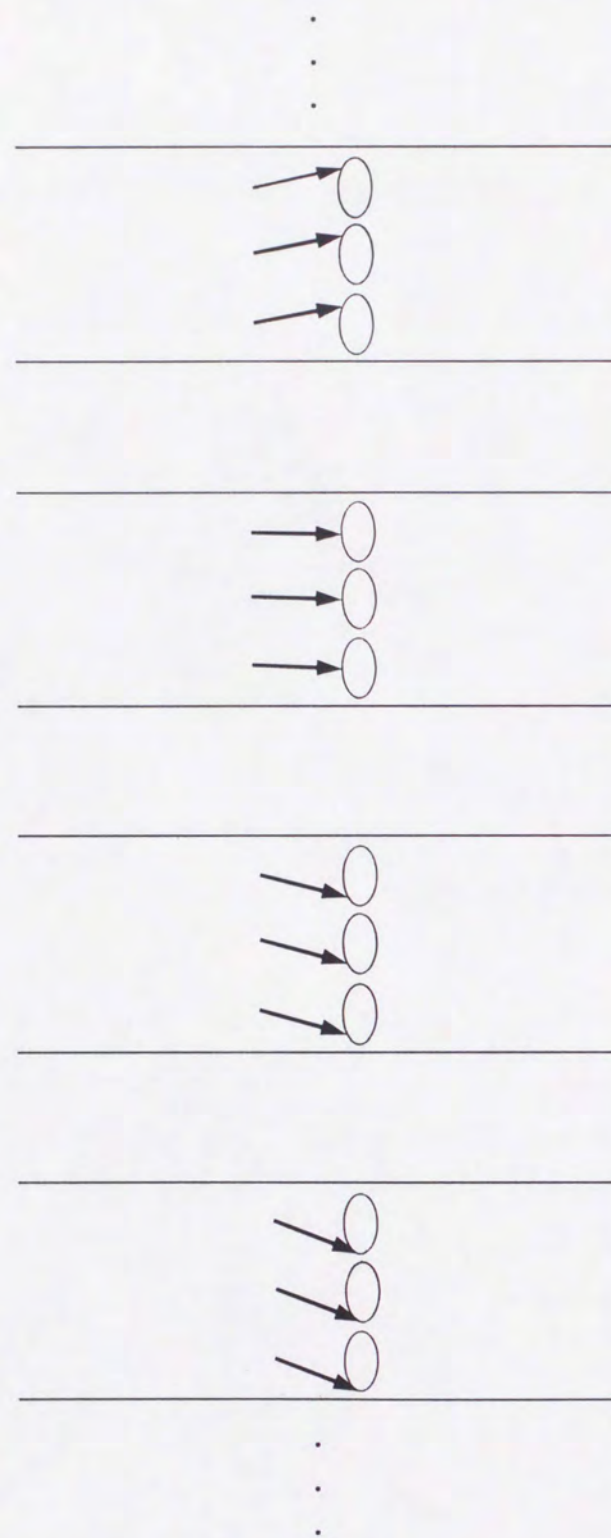


図 3 0 励起エネルギー  $\varepsilon_z$  のスピン運動  
の概念図

b c c 構造を考慮して 8 としたものである。 b c c 構造の (1 1 0) 面の対称性を考えて、分散関係を次のように与える。ただし面内での交換積分を  $J$ ，面間の交換積分を  $J'$  とした。

$$E(\mathbf{K}) = 2 S z J \left\{ 1 - \frac{1}{3} \left[ \cos\left(\frac{1}{2}K_x\right) \cdot \cos\left(\frac{1}{2}K_y\right) + \cos\left(\frac{1}{2}K_x\right) + \cos\left(\frac{1}{2}K_y\right) \right] \right\} \\ + 2 S z' J' (1 - \cos K_z) + g \mu_B H_{eff} \quad (44)$$

ここで  $K_i$  はスピン波ベクトルの  $i$  成分， $g$  は  $g$  値， $\mu_B$  は Bohr 磁子，そして  $H_{eff}$  は外部磁場と異方性磁場の両方を含んだ有効磁場を表す。最近接面数  $z'$  は最も外側の面には最近接面が 1 つしかないことを考慮して  $z' = 2 - 2/n$  と考えることにする。面内方向に関しては， $\cos(\ )$  を展開し，長波長近似により高次の項を無視すると，

$$E(\mathbf{K}) = 2 S z J \frac{1}{3} \left[ \left(\frac{K_x}{2}\right)^2 + \left(\frac{K_y}{2}\right)^2 \right] + 2 S z' J' (1 - \cos K_z) \\ + g \mu_B H_{eff} \quad (45)$$

なおこの長波長近似を行うと，面内の対称性は分散関係にほとんど影響を与えなくなる。低温度領域における磁化の減少は，

$$1 - \frac{M}{M_0} = \frac{1}{N_\mu S} \sum_{\mathbf{K}} \frac{1}{\exp(E(\mathbf{K})/k_B T) - 1} \quad (46)$$

で与えられる。ただし  $N_\mu$  は全スピン数 ( $= 2 N^2 n$ )， $k_B$  はボルツマン定数である。式(45)を式(46)に代入して計算を行うが，ベクトル  $\mathbf{K}$  についてとる和を面内方向と面に垂



直方向に分ける。すなわち、

$$\sum_{\mathbf{K}} \dots = \sum_{K_z} \sum_{K_x, K_y} \dots$$

$K_x^2 + K_y^2 = K^2$  として、面内方向の和  $\sum_{K_x, K_y}$  を積分に置き換えると、

$$\sum_{\mathbf{K}} \dots = \sum_{K_z} \frac{1}{4} \int_{2\pi/N}^{\infty} \left(\frac{N}{\pi}\right)^2 2\pi K \cdot dK \left/ \left( \exp \left[ \frac{2S_z J K^2}{3k_B T} + \frac{2S_z J' (1 - \cos K_z) + g\mu_B H_{eff}}{k_B T} \right] - 1 \right) \right. \quad (47)$$

積分に特に効いてくるのは  $K$  が小さいところだけであるから、積分の上端を  $\infty$  として計算

の簡易化を図った。積分を実行すると、

$$\sum_{\mathbf{K}} \dots = - \frac{N^2}{2\pi} \sum_{K_z} \left( \frac{3k_B T}{4S_z J} \right) \log \left\{ 1 - \exp \left[ - \frac{2S_z J}{3k_B T} \left( \frac{\pi}{N} \right)^2 - \frac{2S_z J' (1 - \cos K_z) + g\mu_B H_{eff}}{k_B T} \right] \right\} \quad (48)$$

$K_z$  に関する和は近似を使わずに、計算機を利用して数式通りに数值的に計算を行った。

計算に使用した値は次の通りである：

$$S = 1, \quad z = 8, \quad z' = 2 - 2/n, \quad J = 2.76 \times 10^{-14} \text{ erg}, \quad g = 2, \quad N = 10^7.$$

面間の交換積分  $J'$  と有効磁場  $H_{eff}$  のみが可変なパラメーターとなり、実験結果を再現

するようにこれらの値を決めることになる。  $J$  の値はバルク Fe における値を採用した。

また計算結果へのサイズ  $N$  の影響に関しては、  $N$  が  $\sim 10^4$  以上ではサイズの違いによる

計算結果の違いは見いだされなかった。現実の物質では多結晶構造をとるために、サイ

ズをここまで大きく取ることには疑問もある。しかし、あまりサイズが小さいと面内方

向のスピン波に長波長近似を適用することさえ不適當なことになるので、あくまでも理想

的な場合を扱っているものとしてサイズを大きく取ることにした。

上述した理論的な扱いでは、磁化の減少  $1 - M/M_0$  を解析的な式で与えていない

ので、数値計算の結果と実験結果を比較するために次のような方法を取る。まず、与え

られた Fe 層数  $n$  に対して、実験を行った温度領域で温度を数点選び、各温度で  $1 - M/M_0$

を計算する。次に計算によって得られた  $1 - M/M_0$  と  $T$  との相関を

$$1 - M/M_0 = C T^{\alpha}, \quad (49)$$

に対して最小二乗法でフィッティングして係数  $C$  と指数  $\alpha$  を求める。つまり実験的に求

めた方法と同じ方法で  $C$  と  $\alpha$  を数値計算結果から求めるわけである。図 3 1 に  $H_{eff} =$

$0.5 \text{ kOe}$ ,  $J' = J/50$  に対する  $n = 1$  と  $n = 12$  の計算結果 (●) と最小二乗法

による結果 (実線) を示す。計算によって得られた  $1 - M/M_0$  の温度依存性も、実験

で得られた結果と同じように、式 (49) に極めてよく従うことがわかる。このような方法

で  $n$  と  $J'$  の関数として求められた指数  $\alpha$  を図 3 2 に示す。係数  $C$  に関しては、計算に

基づいて求められた値は実験値と同じオーダーの値を与えたことだけ述べておく。図

3 2 における計算では、実験結果を最もよく再現するように  $H_{eff} = 0.5 \text{ kOe}$  とした。

ここでは積層回数や Au 層厚が変化しても異方性磁場に変化はないと考え、すべての  $n$  と



$J'$  に対して一定の  $H_{eff}$  で計算を行った.

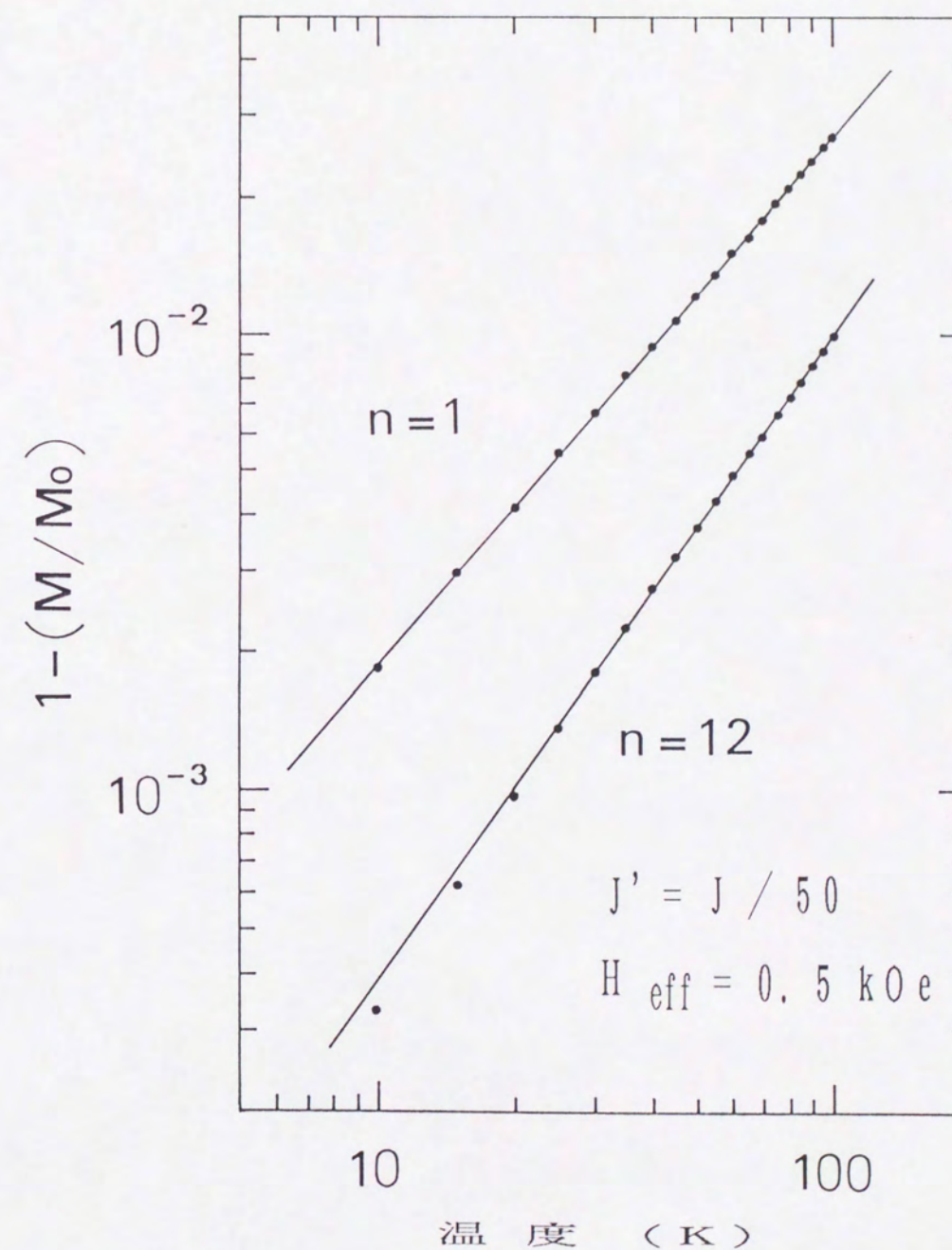


図 3 1 式 (46) に基づく  $n = 1, 12$  に対する計算結果 [・] と式 (49) への最小二乗フィッティングの結果 [実線]



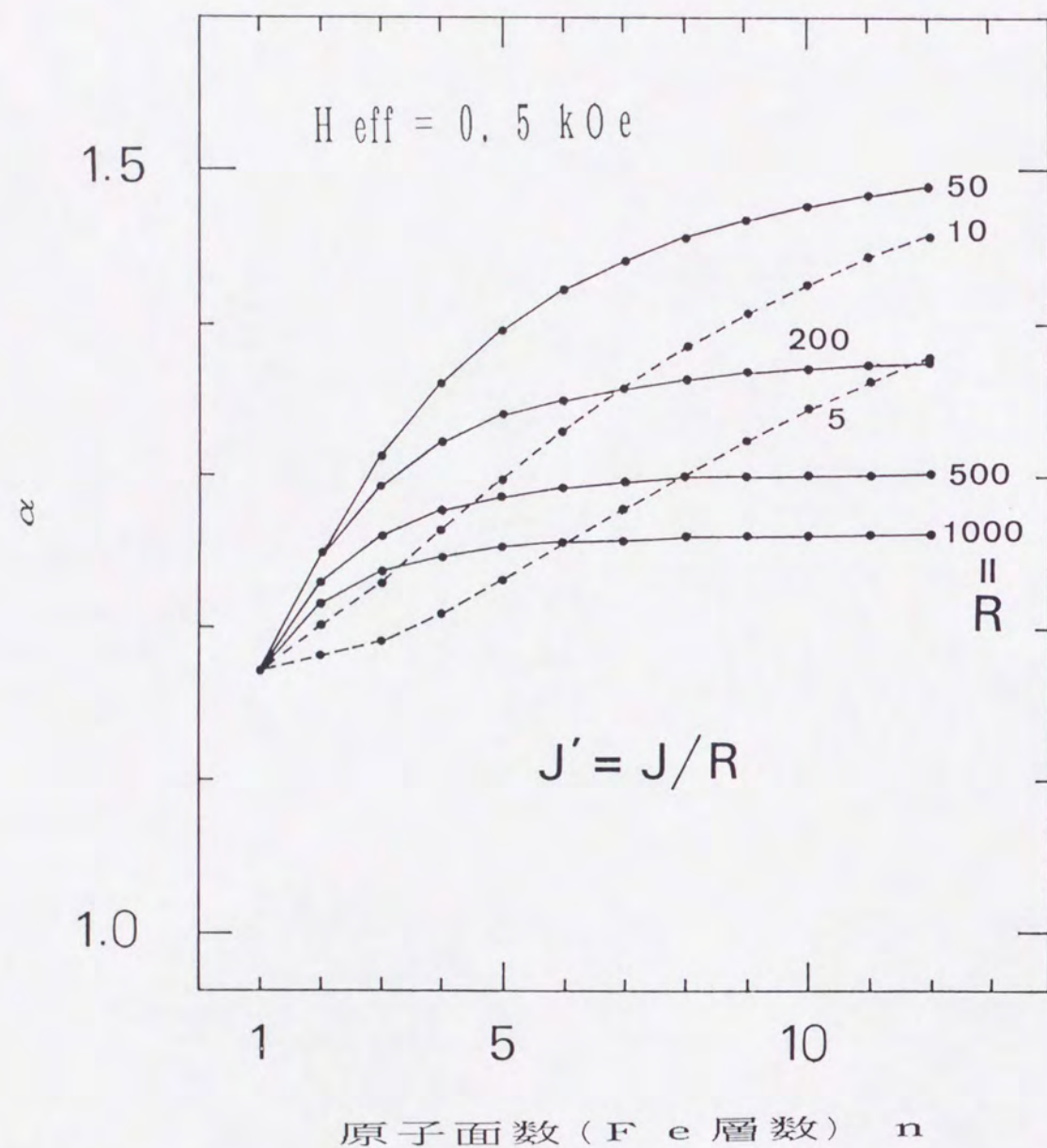


図 3 2 理論的に求められた  $\alpha$  の  $n$  と  $J'$  への依存性

### 3. 4 議 論

3. 3 で考察したモデルによって実験結果を解釈する場合の一つの困難は、 $H_{\text{eff}}$  を外部磁場と同じ  $10 \text{ kOe}$  にすると、 $n=1$  に対して得られる  $\alpha$  が  $1.34$  となり、実験値 ( $1.10$ ) と大幅に違ってくることである。一つの解釈は、薄膜において特に重要な役割をする界面異方性による異方性磁場が外部磁場とキャンセルしあって見かけ上  $H_{\text{eff}}$  が小さくなっているように見えると考えることである。あるいは 3. 2 でも述べたように、Fe 層が超常磁性的になっており、モデルで考えた理想的な場合よりゆらぎが大きくなっていることが原因となっているのかもしれない。

$H_{\text{eff}}$  の値に関する疑問が残っているが、実験結果 (図 2 8) は図 3 2 によって定性的に説明することが出来る。 $d = 50 \text{ \AA}$  の試料に対しては  $J' \sim J/50$ 、 $d = 100 \text{ \AA}$  の試料に対しては  $J' \sim J/200$  によって、 $\alpha$  の  $n$  への依存性が再現できることがわかる。ここに評価した  $J'$  の大きさは、II 章において強磁性共鳴モードから評価した層間相互作用の大きさとオーダー的にかなり違っている。これは、ここで扱ったモデルにおいて  $z$  方向の最近接スピン数を 2 としたことが原因になっていると考えられる。直上や直下のスピンとのみ  $z$  方向の相互作用があるとは考えられず、実際の物質では、相手の磁性層にあるスピンすべてに対して積分した相互作用をこちらのスピンは感じていると考えるべきであろう。絶対値では大きな違いがあっても、ここで評価した  $J'$  の相対的な大きさは、II 章で得られたものとほぼ一致している。

$d = 20 \text{ \AA}$  の試料については、実験結果をうまく再現する  $J'$  がないが、これは Fe 層間の相互作用が他の試料 ( $d = 50, 100 \text{ \AA}$ ) に比べて強いために、各 Fe 層を単一



の原子面と見なしたモデルそのものが適当でなくなっている為かもしれない。しかし図 3 2 に見られる  $J'$  が強い場合、特に  $J' = J/5$ ,  $J/10$  の場合、の  $\alpha$  の  $n$  への依存性が  $J'$  が弱い場合の  $n$  への依存性に比べて特異的な点は、 $d = 20 \text{ \AA}$  の試料の特異的な振舞いと似ている。 $J'$  が強い場合の  $\alpha$  の挙動は、次のように直観的にも説明することが出来る。 $n$  が小さく  $J'$  がある程度強いと、式(43)の励起エネルギー  $\varepsilon_z'$  は式(41)の励起エネルギー  $\varepsilon_{x,y}$  よりはるかに大きくなり、多層膜全体を通じた  $z$  方向のスピン波がほとんど励起されなくなり、二次元性が強まると考えればよい。図 3 2 で  $J' = J/5$ ,  $J/10$  に対して、 $n$  が増加するときの  $\alpha$  の立ち上がりが  $J'$  が弱いときに比べて遅いのもこの理由による。従って、 $d = 20 \text{ \AA}$  の試料が  $n = 2$  の場合に小さい  $\alpha$  値 (1.05) をとる実験結果も、定性的ではあるが、説明することが出来る。また  $\alpha$  の飽和値への疑問 ( $\alpha s^{100} < \alpha s^{20} < \alpha s^{50}$ ) も  $n = 10$  の前後で、 $J' = J/10$  の  $\alpha$  のほうが  $J' = J/50$  の  $\alpha$  より小さいという計算結果から考えれば納得することが出来る。

以上のように、各 Fe 層を単一原子面と見なし、原子面間に交換相互作用を導入した単純なモデルによって、Fe/Au 多層膜の磁化の温度依存性が説明できることがわかった。

## § 4 実験 B (層間相互作用による

### 磁気転移温度の変化)

#### 4. 1 実験

この実験では、[Fe(2Å)/Au(d)] 20 多層膜の帯磁率の温度依存性を調べる。

測定用の試料は、ポリイミド基板上に蒸着した試料から  $35 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$  の大きさに切り取った。切り取った試料は半分に折り畳む操作を 4 回繰り返して、ほぼ  $12 \text{ mm} \times 9 \text{ mm}$  の大きさにまで折り畳んだ後、あらかじめ切り込みを入れておいた直径およそ  $5 \text{ mm}$  のストローに差し込んだ。

帯磁率測定には SQUID を使用した。使用した SQUID では直接に帯磁率は測定できないので、0 磁場付近で静磁場を変えて磁化を測定し、実験後にデータ処理をして磁化の外部磁場依存性から帯磁率を求めるという方法を取った。外部磁場はこの実験に共通に試料膜面に平行にかけ、磁場方向の磁化の値を測定した。測定の手順としては、まず  $5 \text{ K}$  において  $10 \text{ kOe}$  の磁場をかけ磁気モーメントの向きを揃えた後、磁場を一度 0 にする。次に  $5 \text{ K}$  ずつ温度を上げながら各温度で  $-20$ ,  $-10$ ,  $0$ ,  $10$ ,  $20 \text{ Oe}$  の磁場をかけて磁化測定を行う。磁場の向きは最初にかけた  $10 \text{ kOe}$  の磁場の向きを+とした。全ての試料に対して  $5 \text{ K}$  から室温までの測定を行いたかったが、SQUID の自動測定のシーケンスは最大  $500$  ステップまでしか取れないために、測定温度を  $5 \text{ K}$  毎にしても  $200 \text{ K}$  の温度範囲しかカバーできない。従って試料の転移温度が測定温度範囲内に入るように、試料に応じて  $5 \sim 150 \text{ K}$  または  $100 \text{ K} \sim 300 \text{ K}$  どちらか



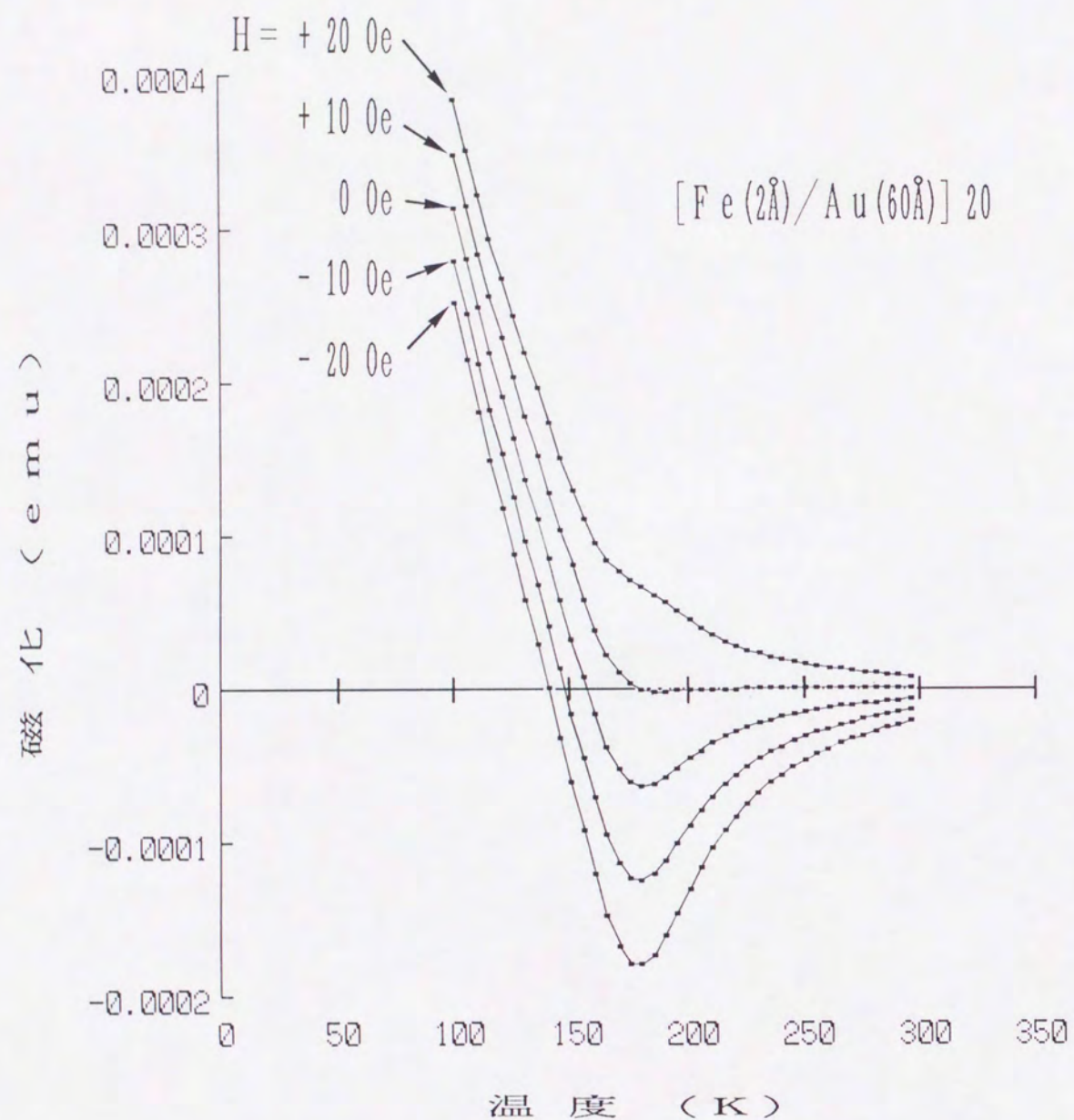
の温度範囲で測定を行った。測定は各温度・各磁場において10回行い、その平均値と標準偏差をデータとした。測定終了後に、各温度に対して得られた外部磁場の関数としての磁化の変化から、最小二乗法によって線形帯磁率を求めた。最小二乗法を行うにあたっては、測定で得られた標準偏差の逆数を「重み」として取り入れ、直線に対してデータをフィットさせ、その傾きを線形帯磁率 $\chi$ とした。

#### 4.2 実験結果

図3.3に、例として多層膜  $[\text{Fe}(2\text{\AA})/\text{Au}(60\text{\AA})]_{20}$  の磁化測定の結果を示す。実際の測定では、各温度で外部磁場を変えて測定を行っているが、磁場の違いによる磁化の温度変化の違いが分かりやすいように各磁場ごとにデータ点を結んでみた。まずこの図からわかることは、0 Oeと言っている状態は実は本当に磁場がない状態ではなく、マグネットの残留磁場の影響のために、+10 Oeの磁場をかけた状態が本当の「零磁場」状態になっていることである。しかし磁場におけるこの程度の0点のずれは帯磁率計算にはあまり影響を及ぼさないであろう。この試料では、180 K付近が磁場による磁化の違いが一番大きい、すなわち帯磁率が極大値をとる温度( $T_c$ )であることがわかる。また温度が $T_c$ 以上では、磁場の関数としての磁化の変化の線形性がよい(5つの曲線の間隔が各温度においてほぼ等しい)が、 $T_c$ 以下ではあまり線形性がよくないこともわかる。 $T < T_c$ では、Fe層が強磁性になって磁区構造を取るために線形性が悪くなると考えられる。従って、 $T < T_c$ での線形帯磁率 $\chi$ は、 $T > T_c$ での $\chi$ ほど絶対値としての意味はないことになる。

図3.3に示した測定結果から、前節で述べた方法によって、線形帯磁率 $\chi$ を求めた結果を図3.4に示す。 $\chi$ と同時に零磁場での磁化、ここでは+10 Oeの磁場をかけた場合の磁化、を示す。自発磁化の消失する温度と $\chi$ が極大を取る温度が一致しているのがわかる。これは、この $d = 60 \text{\AA}$ の試料に限らず、すべての試料において見いだされている。Fe層は $2 \text{\AA}$ と薄くアモルファス的な構造を取っていると考えられるので、Fe層内の磁氣的なゆらぎは通常のFeより大きいと考えられるが、 $\chi$ が極大値をとる温





※ 実際の測定では、各温度において外部磁場を変えて測定を行った。

図 3 3 外部静磁場の違いによる  
磁化の温度変化の違い

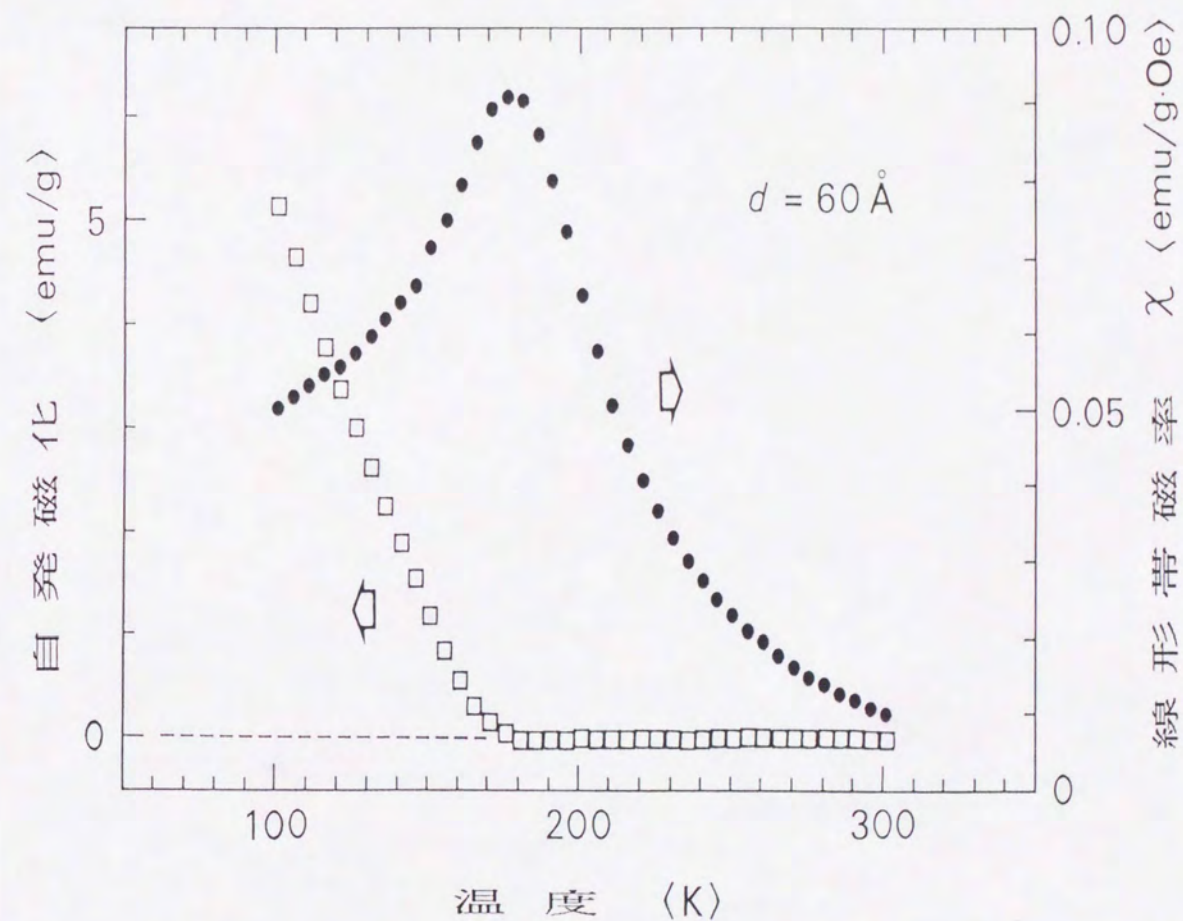


図 3 4 線形帯磁率  $\chi$  と自発磁化の  
温度依存性の例 ( $d = 60 \text{ \AA}$ )



度は、強磁性から常磁性へ転移するキュリー温度であると考えてもよいようである。しかし、この転移点の性格は、他の実験手段と併せて詳細に検討される必要があるので、ここでは $\chi$ が極大値をとる温度を表す $T_c$ のcは、"critical"の意味で使っていく。

線形帯磁率 $\chi$ の温度依存性を、代表的な試料に対して図35に示す。 $d \geq 15 \text{ \AA}$ の試料については、ほとんどすべての試料が同じ様な温度依存性を示し、 $\chi$ が極大値を取る温度をはっきりと読み取ることが出来る。 $d \geq 15 \text{ \AA}$ の試料に対しては $T_c$ の決定に困難はない。一方 $d < 15 \text{ \AA}$ の試料では、はっきりとした極大を取らなかったり（例えば $d = 10 \text{ \AA}$ ）、室温以下に極大がない（例えば $d = 5 \text{ \AA}$ ）試料があることがわかる。この $d = 5 \text{ \AA}$ の場合に、室温以上に転移温度があるのかどうかはこの測定ではわからないが、 $d \rightarrow 0$ の極限の試料では、Feのキュリー温度 $1040 \text{ K}$ に達するであろうと予想される。 $d < 15 \text{ \AA}$ の場合には、多層膜全体が一つの磁性層と見なせるほどFe層間が強く相互作用を及ぼしあっていると考えられる。これはII章において強磁性共鳴から得られたAu層を介したFe層間の強磁性的相互作用が、Au層厚が $18 \text{ \AA}$ 以下で急に強くなっていることと対応している。

各試料に対して得られた転移温度 $T_c$ と $\chi$ の極大値 $\chi_{\max}$ のAu層厚 $d$ への依存性を図36に示す。右端の $d = \infty$ のデータ点は、レファレンス用として作製した試料Au( $200 \text{ \AA}$ )/Fe( $2 \text{ \AA}$ )/Au( $100 \text{ \AA}$ )のデータを表す。 $\chi_{\max}$ の物理的な意味は明確ではないが、 $d$ に対する系統的な変化を示しているのであえてここに載せることにした。 $T_c$ に関しては、 $d$ が増加するにつれて全般的に低下し、 $100 \text{ \AA}$ 以上ではほぼ一定値 $150 \text{ K}$ に達している。 $T_c$ の低下はFe層間の強磁性的相互作用が弱くなった為と考えられるの

※ 破線は帯磁率の0レベルを示す

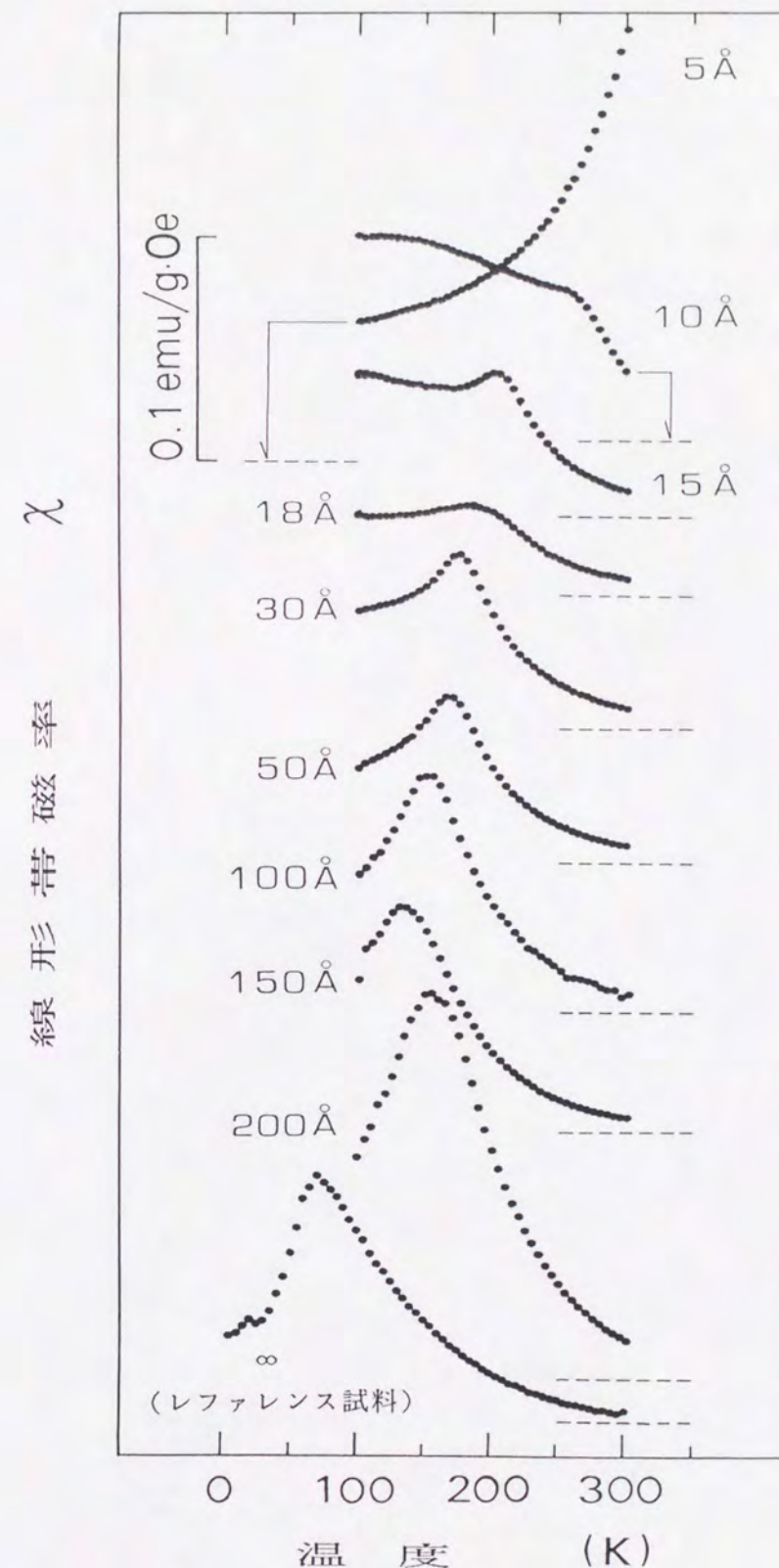


図35 線形帯磁率 $\chi$ の温度依存性 (代表例)



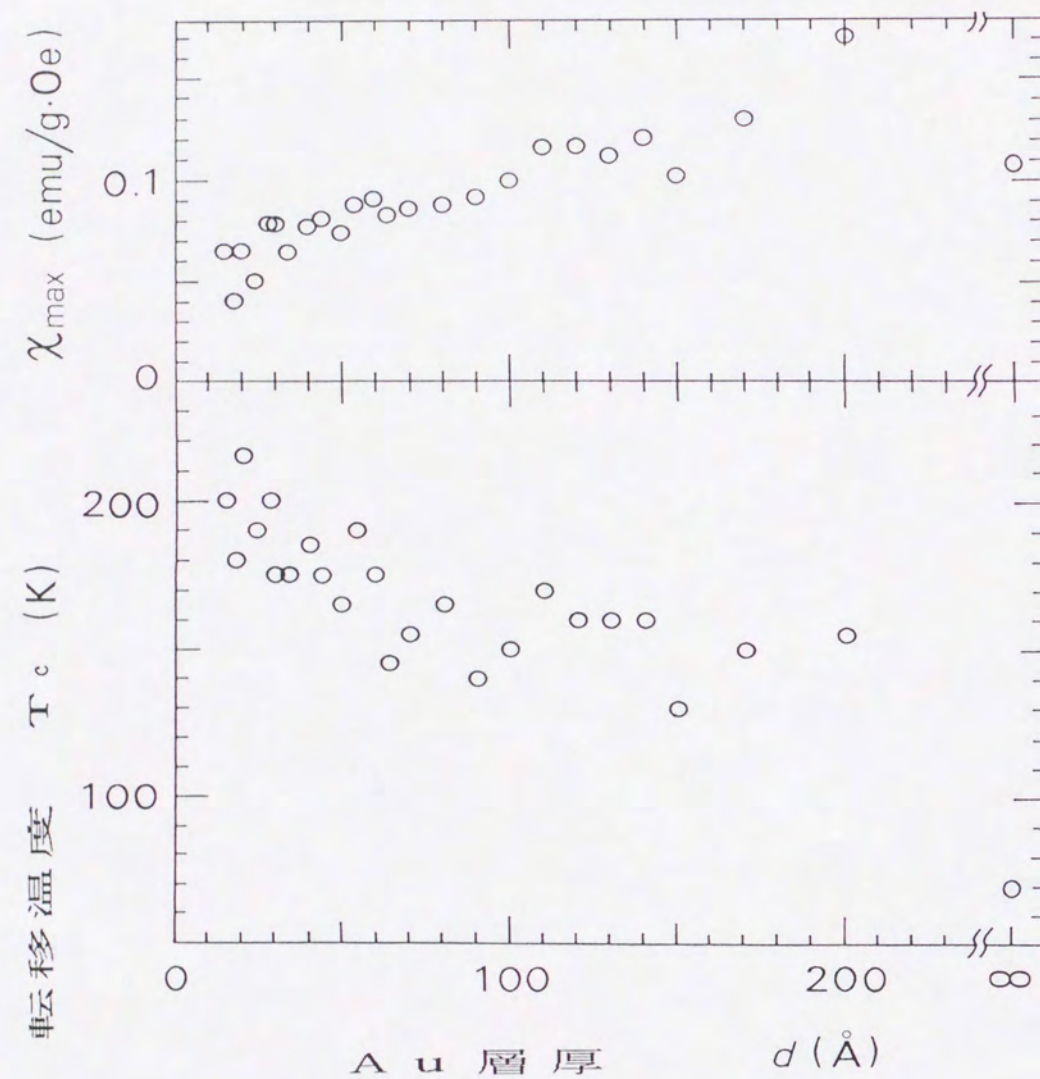


図 3 6 転移温度  $T_c$  と線形帯磁率  $\chi$  の極大値  $\chi_{\max}$  の Au 層厚  $d$  への依存性

で、図 3 6 の結果は強磁性共鳴で得られた  $d$  への結合パラメータの依存性 (図 1 8) と極めてよく一致している。ただ一つの疑問点は、 $d = \infty$  の試料として作製されたレファレンス試料の  $T_c$  が 70 K であり、 $d > 100$  Å の試料の  $T_c$  がおよそ 150 K であるから両者の値にかなりの隔たりがあることである。この結果を素直に解釈すれば、Au 層厚が 200 Å でもまだ Fe 層間には相互作用が残っているということになる。この点に関しては次の節で述べる。



#### 4. 3 議 論

§ 1 の終わりに述べた線形帯磁率  $\chi$  が  $T_c$  近傍でベキ乗則にのらないことについて考える。いくつかの試料について  $T_c$  以上での  $T_c$  近くの  $\chi$  の振舞いを調べた。  $\chi$  がベキ乗則にのるところはなく、むしろ対数的な増加を示す温度領域が  $T_c$  近くにあることがわかったが、より  $T_c$  に近い温度では増加が更に鈍って、結局  $T_c$  でピークを示すだけで発散はしない。試料が理想的に出来ていると仮定した場合には、この原因としては、線形帯磁率のみを考えて非線形部分の寄与を考慮しなかった為であると解釈することもできる。臨界点では線形項よりもむしろ非線形項の寄与が大きいことは既によく知られている。試料に原因があると考えられる場合には、次のようにいくつか原因が考えられる。まず、各試料に含まれる 20 の Fe 層が磁氣的に同一ではなく、転移点が分布していると考えられることである。あるいは試料の多結晶構造による Fe 層の有限サイズ効果によって、転移がシャープに起こらないと考えることもできるかもしれない。  $T_c$  において本当に相転移が起こっているのかという疑問と併せて、実験的にも更に検討が必要となる問題であるが、Fe 層間相互作用を見るプローブとして  $T_c$  を使うことには疑問は起こらないと思われる。

次に  $d > 100 \text{ \AA}$  の試料の  $T_c$  がレファレンス試料の単層膜試料の  $T_c$  より高いことについて考察する。この結果を素直に考えれば、Au 層厚が  $200 \text{ \AA}$  でもまだ Fe 層間に相互作用が残っていることになるが、これほど長距離まで相互作用が伝わるものか疑問がある。Mattssonら [30] は Cu(Mn) スピングラス層を含んだ Cu(Mn) / Cu 多層膜において、Cu 層厚を  $1000 \text{ \AA}$  程度までにしても Cu(Mn) スピングラス

層間に RKKY 相互作用が残り、スピングラス転移に変化が見られたことを報告している。スピングラス層は弱い相互作用に対して非常に敏感であり、また  $1000 \text{ \AA}$  の Cu 層でも RKKY 相互作用を伝えることができると彼らは結論している。この報告を参考にすれば、我々の試料において  $200 \text{ \AA}$  の Au 層を介して Fe 層間に相互作用があっても何の不思議もないことになる。強磁性共鳴によって評価された Au 層を介した Fe 層間の相互作用が  $100 \text{ \AA}$  付近で 0 になっていることと比較すれば、この実験のように非常に薄い磁性層を含んだ多層膜の  $T_c$  は、相互作用の更に敏感なプローブとして使える可能性があることを示唆している。

まだいくつかの解明されなければならない点は残っているが、ここで述べた実験は磁性層間相互作用の新しい研究手段のひとつになる可能性を秘めていると言えるであろう。



## § 5 ま と め ( 2 )

Fe / Au 多層膜を作製し、低温度領域での磁化の温度変化及び磁気転移温度の Au 層厚や Fe 層数への依存性を調べた。

磁化の温度依存性からみた多層膜の磁氣的な次元性は、Au 層厚と Fe 層数によって変化を示し、Au 層厚が厚いほど、Fe 層数が少ないほど二次元的な振舞いをした。

Fe 層を単一原子面と見なし、その原子面間に交換相互作用を導入したモデルに基づいたスピン波近似計算によって、磁化の温度依存性を解釈することができた。また、磁気転移温度の Au 層厚による変化の傾向は、強磁性共鳴実験によって得られた Fe 層間相互作用の変化と対応していることがわかった。

以上二つの実験結果は、Au 層厚を変えることによって Fe 層間の強磁性的相互作用の大きさが変えられることを示しているだけでなく、磁性 / 非磁性の組み合わせによる多層膜によって擬二次元磁性体可以实现できること、そして磁性層間の強磁性的相互作用の変化によって二次元から三次元への次元クロスオーバーが観察できることを示している。

## IV

## 結 論



この研究においてはFe／貴金属多層膜を利用して、貴金属層を介したFe層間相互作用の評価及びFe層間相互作用に基づく物性、特に次元性の発現の研究を行った。磁性層としてFeを、非磁性層として貴金属を選んだが、この研究には磁性／非磁性多層膜一般に通ずるものがあるはずである。

非磁性層を介した磁性層間の相互作用に関しては、まだその物理的機構が明確に把握されていないが、この研究の前半においても明らかにされたように、非磁性層の厚さを変えることによって磁性層間の磁気的な相互作用を変えることができる。この結果は既に確立された事実であると言ってよい。この事実を積極的に利用すれば、低次元磁性体と十分に見なしうる自然界には存在しない物質を作製することが可能となる。これは、この研究の後半から明らかにされたことである。

将来的には、より品質のよい試料を用いてより信頼性のあるデータを得ることが必要であろう。工学的進歩を積極的に取り入れて、磁性の基礎的な研究領域を豊かなものにしたいと切実に思う。

## 謝 辞

この学位論文をまとめるにあたって有益な助言・指導をしていただいた新庄研究室スタッフの新庄先生、細糸先生、壬生先生に感謝致します。

研究全般にわたって、物理的な解釈や実験のアイデア等に関して貴重な時間をディスカッションに割いていただいた福井大学の網代先生に感謝致します。

TEMの写真は以前研究室に籍を置いた美馬君の協力によるものです。面倒な仕事を図書券3,000円分で行ってくれた彼に感謝します。

Ⅲ章で扱ったスピン波近似に関しては、神戸大学の利根川先生、鍋木先生に貴重なご意見を伺いました。ここに感謝致します。

低温実験において使用した液体Heの利用にあたっては、極低温化学物性実験室技官の楠田さんにお世話になりました。

その他、両親を含めた多くの方々にここで感謝の意を表すと共に、京都大学において学ぶ機会が与えられたことに対して感謝致します



# 参考文献

- [ 1 ] A. Yelon, "Physics of Thin Films" vol.6, p.205-295 (Academic Press, New York and London, 1971).
- [ 2 ] C. Maurain, J. Phys. (Paris) 1(1902)90.
- [ 3 ] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky and H. Sowers, Phys. Rev. Lett. 57(1986)2442.
- [ 4 ] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friedrich and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. 61(1988)2472.
- [ 5 ] U. Gradmann, R. Bergholz and E. Bergter, IEEE Trans. Magn. Magn. 20(1984)1840.
- [ 6 ] 私信 (鈴木義茂氏 [電総研])
- [ 7 ] S. Araki, T. Takahata, H. Dohnomae, T. Okuyama and T. Shinjo, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 151(1989)123.
- [ 8 ] 例えば 伊達宗行「電子スピン共鳴」(培風館 1978) .
- [ 9 ] C. Kittel, Phys. Rev. 73(1948)155.
- [ 10 ] C. Chappert, K. Le Dang, P. Beauvillain, H. Hurdequint and D. Renard, Phys. Rev. B34(1986)3192.
- [ 11 ] H. Yamazaki, Y. Ajiro, I. Moritani, N. Nakayama and T. Shinjo, J. Phys. Soc. Jpn. 57(1988)4343.
- [ 12 ] Y. Ajiro, H. Yamazaki, K. Kawaguchi, N. Hosoi to and T. Shinjo, J. Phys. Soc. Jpn. 58(1989)3339.
- [ 13 ] M. Pomerantz, J. C. Slonczewski and E. Spiller, J. Appl. Phys. 61(1987)3747.

- [ 14 ] J. F. Cochran, B. Heinrich and A. S. Arrott, Phys. Rev. B34(1986)7788.
- [ 15 ] B. Heinrich, S. T. Durcell, J. R. Dutcher, K. B. Urquhart, J. F. Cochran and A. S. Arrott, Phys. Rev. B38(1988)12879
- [ 16 ] 例えば A. I. Akhiezer, V. G. Bar'yakhtar, S. V. Peletminski, "Spin Waves" (North-Holland, 1968).
- [ 17 ] F. Hoffman, Phys. Status Solidi 41(1970)807.
- [ 18 ] A. Z. Maksymowicz, J. S. S. Whiting, M. L. Watson and A. Chambers, J. Magn. Magn. Mater. 94(1991)109-112.
- [ 19 ] Z. Celinski and B. Heinrich, J. Magn. Magn. Mater. 99(1991)L25.
- [ 20 ] P. Bruno and C. Chappert, Phys. Rev. Lett. 67(1991)1602.
- [ 21 ] H. Yamazaki, Y. Ajiro, N. Hosoi to and T. Shinjo, J. Phys. Soc. Jpn. 60(1991)764.
- [ 22 ] A. Fuß , S. Demokritov, P. Grünberg and W. Zinn, J. Magn. Magn. Mater. 103(1992)L221.
- [ 23 ] P. J. H. Bloemen, E. A. M. van Alphen and W. J. M. de Jonge, J. Magn. Magn. Mater. 104-107(1992)1775.
- [ 24 ] B. Heinrich, Z. Celinski, K. Myrtle, J. F. Cochran, A. S. Arrott and J. Kirschner, J. Magn. Magn. Mater. 93(1991)75.
- [ 25 ] B. Heinrich, J. F. Cochran, M. Kowalewski, J. Kirschner, Z. Celinski, A. S. Arrott and K. Myrtle, Phys. Rev. B44(1991)9348.
- [ 26 ] Kh. M. Pashaev and D. L. Mills, Phys. Rev. B43(1991)1187.
- [ 27 ] J. F. Cochran and B. Heinrich, Phys. Rev. B45(1992)13096.
- [ 28 ] C. Marlière, J. P. Chauvineau and D. Renard, Thin Solid Films, 189(1990)359.
- [ 29 ] J. A. Cowen, G. G. Kenning and J. M. Slaughter, J. Appl. Phys. 61



(1987)4080.

- [ 3 0 ] J. Mattsson, P. Granberg, P. Nordblad, L. Lundgen, R. Stubi, J. Bass, R. Loloee and J. A. Cowen, J. Magn. Magn. Mater. 104-107(1992)1619.
- [ 3 1 ] U. Gradmann and J. Müller, Phys. Status Solidi, 27(1968)313.
- [ 3 2 ] M. J. Klein and R. S. Smith, Phys. Rev. 81(1951)378.
- [ 3 3 ] S. J. Glass and M. J. Klein, Phys. Rev. 109(1958)288.
- [ 3 4 ] C. J. Gutierrez, Z. Q. Qiu, H. Tang, M. D. Wieczorek, S. H. Mayer and J. C. Walker, Phys. Rev. B44(1991)2190.
- [ 3 5 ] Z. Q. Qiu, J. E. Mattson, C. H. Sowers, U. Welp, S. D. Bader, H. Tang and J. C. Walker, Phys. Rev. B45(1992)2252.
- [ 3 6 ] M. Macciò, M. G. Pini, P. Politi and A. Rettor, Phys. Rev. B46(1992) 8276.